

**Titre:** Détermination des conductivités thermiques et des paramètres cinétiques d'un matériau composite  
Title:

**Auteur:** Hervé Menge  
Author:

**Date:** 2003

**Type:** Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

**Référence:** Menge, H. (2003). Détermination des conductivités thermiques et des paramètres cinétiques d'un matériau composite [Mémoire de maîtrise, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie. <https://publications.polymtl.ca/7140/>  
Citation:

 **Document en libre accès dans PolyPublie**  
Open Access document in PolyPublie

**URL de PolyPublie:** <https://publications.polymtl.ca/7140/>  
PolyPublie URL:

**Directeurs de recherche:**  
Advisors:

**Programme:** Non spécifié  
Program:

**In compliance with the  
Canadian Privacy Legislation  
some supporting forms  
may have been removed from  
this dissertation.**

**While these forms may be included  
in the document page count,  
their removal does not represent  
any loss of content from the dissertation.**



UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

DÉTERMINATION DES CONDUCTIVITÉS THERMIQUES ET DES PARAMÈTRES  
CINÉTIQUES D'UN MATÉRIAU COMPOSITE

HERVÉ MENGE

DÉPARTEMENT DE GÉNIE MÉCANIQUE  
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION  
DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES  
(GÉNIE MÉCANIQUE)

AOÛT 2003





National Library  
of Canada

Bibliothèque nationale  
du Canada

Acquisitions and  
Bibliographic Services

Acquisitions et  
services bibliographiques

395 Wellington Street  
Ottawa ON K1A 0N4  
Canada

395, rue Wellington  
Ottawa ON K1A 0N4  
Canada

*Your file    Votre référence*

*ISBN: 0-612-86418-9*

*Our file    Notre référence*

*ISBN: 0-612-86418-9*

The author has granted a non-exclusive licence allowing the National Library of Canada to reproduce, loan, distribute or sell copies of this thesis in microform, paper or electronic formats.

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque nationale du Canada de reproduire, prêter, distribuer ou vendre des copies de cette thèse sous la forme de microfiche/film, de reproduction sur papier ou sur format électronique.

The author retains ownership of the copyright in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur qui protège cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

**Canada**

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

CARACTÉRISATION DES PARAMÈTRES CINÉTIQUES ET DE LA  
CONDUCTIVITÉ THERMIQUE D'UN MATÉRIAU COMPOSITE

présenté par : MENGE Hervé

en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise ès sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

M. NGUYEN Hung T., Ph.D., président

M. TROCHU François, Ph.D, membre et directeur de recherche

M. DETUNCQ Bruno, M.Ing., membre

**DÉDICACE**

À ma famille, à mes amis,  
Et à David Trézeguet.

## REMERCIEMENTS

Cette étude a été réalisée au Centre de Recherche Appliquée sur les Polymères de l'École Polytechnique de Montréal. L'auteur tient à remercier toutes les personnes qui ont contribué à la réalisation de ce mémoire.

Ces remerciements s'adressent tout d'abord au professeur François Trochu, pour son aide et son soutien tout au long de cette étude. Je tiens aussi à remercier Arnaud Millischer qui en peu de temps a su me confier tous les éléments nécessaires et qui a pris la peine de garder contact avec moi pour m'aider.

Je remercie également tous mes collègues étudiants du CRASP qui m'ont aidé lors de cette maîtrise recherche. Enfin, je remercie particulièrement Christian-Charles Martel, technicien du laboratoire, pour sa disponibilité et sa compétence dont il m'a fait profiter.

Mes remerciements vont également à la société JB Martin qui a fourni un tissu de fibres pour les expériences.

Enfin, merci à la ville de Montréal et à tous ses habitants qui m'ont réservé un accueil chaleureux et fait passer deux excellentes années ici.

## RÉSUMÉ

L'objectif de ce travail est d'étudier la caractérisation des paramètres thermophysiques d'un matériau composite à résine thermodurcissable dans le cadre du procédé de moulage par transfert de résine (RTM). Ce mémoire étudie les aspects théorique et pratique d'une telle caractérisation. Une revue des travaux réalisés sur ce sujet par le passé est d'abord présentée. Les méthodes choisies dans le cadre de cette étude sont alors précisées. Un protocole expérimental pour caractériser la cinétique d'une résine thermodurcissable ainsi que les paramètres thermophysiques (capacité calorifique, conductivité thermique) est exposé. La conductivité thermique est identifiée par une méthode inverse. Les transferts thermiques dans le moule conçu pour la mesure de conductivité thermique transverse sont étudiés numériquement avec le logiciel LCMFlot. La conception du moule est modifiée en fonction de plusieurs utilisations prévues. Il est vérifié que la conception finale de ce moule présente les caractéristiques nécessaires pour obtenir une bonne précision lors d'une mesure de conductivité thermique transverse. La possibilité d'utiliser le même moule pour une mesure de la conductivité dans le plan des fibres est étudiée : les transferts thermiques sont analysés et une solution pour adapter le moule pour effectuer une telle mesure est proposée. Enfin, le protocole expérimental complet est présenté, et les résultats expérimentaux obtenus sont discutés.

## ABSTRACT

This work's objective is to study the determination of thermophysical parameters of a composite material with a thermosetting resin, regarding the Resin Transfer Molding process (RTM). The report exhibits the theoretical and experimental aspects of such a characterization. A review of the previous works on this subject is firstly presented. The methods that this study will use are then chosen. An experimental methodology for the characterization of resin kinetics along with thermophysical parameters (heat capacity, thermal conductivity) is exposed. An inverse method is used to determine the thermal conductivity. Heat transfers in the mold designed to measure the thermal transverse conductivity are numerically studied with the software LCMFlot. The mold design is modified regarding the several utilizations it is meant to be used for. It is checked that the final design of the mold has the necessary characteristics to obtain a good precision when measuring the transverse thermal conductivity. The possibility to use the same mold to measure the thermal conductivity in the fibers plane is studied : heat transfers are analyzed and a solution to adapt the mold to do such a measurement is proposed. Finally the complete experimental methodology is presented, and experimental results discussed.

## TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE.....	iv
REMERCIEMENTS.....	v
RÉSUMÉ.....	vi
ABSTRACT.....	vii
TABLE DES MATIÈRES.....	viii
LISTE DES TABLEAUX.....	xii
LISTE DES FIGURES.....	xiii
LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS.....	xvii
LISTE DES ANNEXES.....	xxi
 INTRODUCTION.....	 1
 CHAPITRE 1: REVUE BIBLIOGRAPHIQUE.....	 5
1.1 Transfert par moulage de résine.....	5
1.2 Modélisation thermique.....	7
1.3 Paramètres cinétiques.....	11
1.4 Modélisation de la conductivité thermique .....	15
1.4.1 Approximation homogène.....	15
1.4.2 Modélisation de la conductivité thermique transverse.....	16
1.4.3 Modélisation de la conductivité thermique longitudinale.....	17
1.4.4 Validation des modèles.....	18
1.5 Méthodes de détermination de la conductivité thermique.....	19
1.5.1 Méthodes en régime permanent.....	20
1.5.2 Méthodes en régime transitoire.....	21
1.5.3 Méthodes inverses.....	22
1.6 Conclusion.....	23

CHAPITRE 2: PRÉSENTATION DU PROTOCOLE EXPÉRIMENTAL ET DE LA MÉTHODE INVERSE.....	25
2.1 Protocole expérimental.....	25
2.1.1 Principe de l'appareillage expérimental.....	26
2.1.2 Détermination de la chaleur spécifique $C_p$ .....	28
2.1.3 Préparation des échantillons.....	30
2.1.4 Détermination de la conductivité thermique.....	30
2.2 Modèles et validation numérique.....	32
2.2.1 Modèle de conductivité thermique effective.....	32
2.2.2 Validation du programme pour la méthode inverse.....	34
CHAPITRE 3: CONCEPTION ET VALIDATION NUMÉRIQUE D'UN MOULE POUR MESURER LA CONDUCTIVITÉ TRANSVERSE.....	36
3.1 Dimensionnement initial du moule.....	37
3.1.1 Modèle initial.....	38
3.1.2 Agrandissement de la cavité.....	41
3.2 Modélisation du moule final.....	44
3.2.1 Plan du moule et matériaux modélisés.....	44
3.2.2 Validation du maillage et du pas de temps.....	47
3.2.2.1 Validation du maillage.....	47
3.2.2.2 Validation du pas de temps.....	48
3.3 Étude de la distribution de Température .....	49
3.3.1 Transferts de chaleur unidirectionnels verticaux.....	50
3.3.2 Gradient de température .....	53
3.4 Validation de la conception du moule par la méthode inverse.....	55
3.4.1 Identification de quelques conductivités thermiques .....	55
3.4.2 Influence de l'épaisseur de la cavité.....	57
3.5 Simulations tridimensionnelles.....	59
3.6 Conclusion.....	64



CHAPITRE 4: ÉTUDE NUMÉRIQUE DE LA CONCEPTION DU MOULE EN CONFIGURATION DE MESURE LONGITUDINALE.....	65
4.1 Modélisation du moule.....	65
4.1.1 Plan et matériaux utilisés.....	65
4.1.2 Validation du maillage.....	67
4.2 Distribution de température et gradient.....	69
4.2.1 Conductivités identiques du matériau et de la gaine.....	69
4.2.1.1 Distribution de température.....	70
4.2.1.2 Gradient de temperature.....	72
4.2.2 Conductivités différentes dans la gaine et dans le matériau à caractériser	75
4.2.2.1 Gaine moins conductrice.....	75
4.2.2.2 Gaine plus conductrice.....	77
4.2.3 Influence de l'épaisseur de la cavité.....	78
4.3 Analyse avec la méthode inverse.....	80
4.3.1 Les différentes configurations testées.....	80
4.3.1.1 Configuration initiale.....	80
4.3.1.2 Configuration avec gaine de chauffage.....	81
4.3.1.3 Configuration avec deux éléments de chauffage.....	82
4.3.2 Matériaux testés.....	83
4.3.3 Résultats.....	84
4.3.3.1 Configurations initiale et avec gaine de chauffage.....	84
4.3.3.1 Configuration avec deux éléments chauffants.....	86
4.4 Solution proposée.....	87
4.5 Conclusion.....	89
CHAPITRE 5: PROCÉDURE EXPÉRIMENTALE DE MESURE DE CONDUCTIVITÉ THERMIQUE TRANSVERSE.....	91
5.1 Présentation du moule et du système d'injection.....	91
5.1.1 Éléments du moule.....	91

5.1.2	Contrôle de l'épaisseur de la cavité.....	93
5.1.3	Système d'injection.....	94
5.1.4	Chauffage transverse.....	95
5.2	Instrumentation du moule.....	96
5.2.1	Thermocouples.....	96
5.2.2	Capteurs de pression.....	97
5.2.3	Acquisition de données.....	98
5.3	Mise en service du moule et problèmes rencontrés.....	98
5.3.1	Système de chauffage.....	99
5.3.2	Injection.....	102
5.4	Protocole expérimental.....	103
5.4.1	Préparation des matériaux et du moule.....	103
5.4.2	Injection et cuisson de la résine.....	105
5.4.3	Nettoyage.....	105
5.4.4	Exploitation des résultats.....	106
5.5	Résultats expérimentaux.....	107
5.6	Conclusion.....	110
	CONCLUSION.....	112
	RÉFÉRENCES.....	116
	ANNEXES.....	122

**LISTE DES TABLEAUX**

Tableau 3.1 : Propriétés des matériaux utilisés dans le modèle initial à $T=300K$ ...	38
Tableau 3.2 : Propriétés thermophysiques des matériaux.....	46
Tableau 4.1 : Propriétés thermophysiques des matériaux.....	67
Tableau 4.2: Matériaux composites virtuels testés pour la caractérisation thermique par la méthode inverse.....	84

## LISTE DES FIGURES

Figure 1.1:	Procédé RTM.....	6
Figure 1.2:	Méthode de la plaque chaude gardée.....	20
Figure 2.1:	Schéma de l'appareillage expérimental pour mesurer la conductivité transverse.....	26
Figure 2.2:	Chaleur spécifique massique $C_p$ pour les résines crue et cuite en fonction de la température T.....	29
Figure 2.3:	Cycle de chauffage typique du moule de mesure.....	31
Figure 2.4:	Validation du code d'identification de conductivité.....	35
Figure 3.1:	Schéma en coupe du moule initial.....	39
Figure 3.2:	Distribution de température dans le moule initial ( $t=282s$ ).....	40
Figure 3.3:	Distribution de température dans le moule agrandi et schéma correspondant.....	42
Figure 3.4:	Distribution de température dans le moule agrandi avec capteur de pression et schéma correspondant.....	43
Figure 3.5:	Coupe du moule, configuration "conductivité transverse" .....	45
Figure 3.6 :	Influence de la précision du maillage.....	48

Figure 3.7:	Influence du pas de temps.....	49
Figure 3.8.:	Distribution de température durant la phase de chauffage au temps $t=941s$ .....	51
Figure 3.9:	Vue de détail sur la distribution de température au centre de la pièce au temps $t=941 s$ .....	51
Figure 3.10:	Différence de température entre deux séries de senseurs écartées de 2 cm.....	52
Figure 3.11:	Pourcentage d'écart en température entre ces mêmes séries de senseurs.....	53
Figure 3.12:	Profil de température à travers l'épaisseur du moule et du composite.....	54
Figure 3.13:	Gradient de température dans l'épaisseur du composite (temps identiques à la Figure 3.12).....	55
Figure 3.14:	Comparaison des conductivités thermiques réelles et identifiées....	56
Figure 3.15:	Erreur en pourcentage sur les conductivités mesurées virtuellement.....	57
Figure 3.16:	Erreur relative moyenne sur la mesure de conductivité en fonction de l'épaisseur de la cavité.....	58

Figure 3.17 :	Erreur relative sur l'identification de la conductivité (simulation 3D).....	60
Figure 3.18:	Distribution de température : en haut, vue en coupe (en largeur); en bas, la même vue avec une échelle de température raffinée.....	61
Figure 3.19:	Distribution de température: en haut, vue en coupe (en longueur); en bas, la même vue avec une échelle de température raffinée.....	62
Figure 3.20:	Distribution de température à l'interface entre le composite et le plateau du moule; en haut la coupe du moule complet, en bas une coupe de l'interface seule avec une échelle de température raffinée.....	63
Figure 4.1:	Coupe du moule en configuration « conductivité longitudinale »...	66
Figure 4.2:	Convergence du maillage.....	69
Figure 4.3:	Distribution de Température à 422s, configuration longitudinale...	71
Figure 4.4:	Distribution de Température à 1082s, configuration longitudinale..	71
Figure 4.5:	Pourcentage de différence entre les températures de milieu et de bord de la cavité.....	72
Figure 4.6:	Profils de température dans la longueur de la cavité lors d'un chauffage à vitesse constante.....	73

Figure 4.7:	Évolution du gradient dans le temps à des distances différentes $x$ (en cm) de l'élément chauffant.....	73
Figure 4.8:	Pourcentage du gradient vertical par rapport au gradient horizontal dans le temps.....	74
Figure 4.9:	Distribution de température au temps $t=722$ s.....	76
Figure 4.10:	Différence de température avec le cas idéal en fonction du temps, pour différents senseurs positionnés selon la longueur de la cavité.	77
Figure 4.11:	Différence de température avec le cas idéal en fonction du temps pour différentes positions de senseurs de température.....	78
Figure 4.12:	Erreur due à l'épaisseur de la cavité en fonction du temps (épaisseur $e$ en mm).....	79
Figure 4.13:	Configuration initiale pour caractérisation thermique avec la méthode inverse.....	81
Figure 4.14:	Configuration avec chauffage en gaine pour caractérisation thermique avec la méthode inverse.....	82
Figure 4.15:	Configuration avec deux éléments chauffants pour caractérisation thermique par la méthode inverse.....	83
Figure 4.16:	Relation entre conductivité identifiée et la conductivité réelle.....	87

Figure 4.17:	Dispositif de compaction des fibres pour mesurer la conductivité longitudinale avec le dispositif transverse.....	89
Figure 5.1 :	Schéma du moule fermé.....	92
Figure 5.2 :	Schéma du moule ouvert.....	93
Figure 5.3 :	Indicateur analogique d'épaisseur.....	94
Figure 5.4 :	Évent (ou point d'injection) respectivement fermé et ouvert.....	95
Figure 5.5 :	Coupe du moule en configuration transverse.....	96
Figure 5.6 :	Problèmes rencontrés avec le système de chauffage lors d'un chauffage en rampe.....	100
Figure 5.7 :	Températures relevées au centre et à 50 mm du centre du moule, à environ 1mm de la surface du moule, à l'intérieur de la pièce moulée.....	101
Figure 5.8 :	Évolution de la température au sein de la pièce pendant le cycle de chauffage.....	108
Figure 5.9 :	Conductivité thermique transverse du composite cuit en fonction de la température.....	109
Figure 5.10 :	Conductivité thermique de la résine cuite calculée à partir de la conductivité du composite cuit.....	110



## LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

### Lettres romaines

B	paramètre dans le modèle d'inhibition
$C_0$	chaleur spécifique de la résine crue (J/kg.K)
$C_1$	chaleur spécifique de la résine cuite (J/kg.K)
$C_p$	chaleur spécifique massique isobare (J/kg.K)
E, $E_1$ , $E_2$	énergies d'activation (J)
F, G	des fonctions
dh(t)	enthalpie de réaction dégagée entre l'instant initial et l'instant t (J/kg)
h	coefficient de convection (W/m <sup>2</sup> K)
$\Delta H^r$	Enthalpie totale de réaction (J/kg)
J	critère minimisé dans la méthode inverse
k	loi d'Arrhenius pour les modèles de cinétique (s <sup>-1</sup> )
$k_0$	coefficient dans la loi d'Arrhenius (s <sup>-1</sup> )
$k_1, k_2$	coefficients dans le modèle Kamal et Sourour (s <sup>-1</sup> )
R	constante des gaz parfaits
t	temps (s)
$t_{ref}$	paramètre dans le modèle d'inhibition (s)
$T_0$	température initiale (K)
$T_1$	condition limite en température (K)

$T_2$	condition limite en température (K)
$T$	température (K)
$T_g$	température de transition vitreuse (K)
$\Delta T$	différence de température (K)
$x$	position dans l'épaisseur (mm)
$X$	taux massique de résine dans le composite
$W$	fonction utilisée dans le modèle d'inhibition

### **Lettres grecques**

$\alpha$	degré d'avancement de la réaction
$\rho$	masse volumique ( $\text{kg/m}^3$ )
$\lambda$	conductivité thermique ( $\text{W/mK}$ )
$\eta$	une fonction
$\xi$	fonction intégrale d'induction
$v_f$	fraction volumique de fibres
$\theta$	angle des fibres

### **Indices**

11	selon l'axe principal 1
22	selon l'axe principal 2
comp	du composite

f, fibres	des fibres
long	longitudinal
m	de la matrice
res	de la résine
xx	selon l'axe Ox
$\perp$	transverse

### **Sigles et abréviations**

ATD	Analyse Thermique Differentielle
DSC	Differential Scanning Calorimetry
GMSH	logiciel de maillage
LCMFlot	logiciel de simulation pour les composites
PMC	Polyester Mold Cleaner
RTM	Resin Transfer Molding (Moulage par Transfert de Résine)

**LISTE DES ANNEXES**

Annexe I :	Maillages.....	122
Annexe II :	Coefficients de Convection.....	135
Annexe III :	Propriétés thermiques équivalentes de l'évent et du port d'injection..	141
Annexe IV :	Utilisation du programme transconductv.exe.....	142

## INTRODUCTION

Les applications des matériaux composites à matrice polymères sont de plus en plus nombreuses dans plusieurs domaines et en particulier dans le secteur des transports (aéronautique, automobile, naval, etc.). Les exigences requises par les industriels développant ce type d'applications ont conduit au développement d'une variété de procédés de mise en œuvre. Parmi ces méthodes industrielles, les techniques de production en moules fermés telles que le moulage par transfert de résine (RTM), connaissent un fort développement depuis une dizaine d'années pour des raisons technologiques, économiques et environnementales. Le RTM est une technique de mise en forme de pièces composites à matrice thermodurcissable renforcée par un matériau fibreux. Cette méthode permet de fabriquer des pièces de toute forme. Lors de la fabrication d'un matériau composite par ce procédé, une résine de faible viscosité est injectée dans la cavité d'un moule rigide préchauffé, le plus souvent en acier, contenant une préforme fibreuse sèche. Lorsque le moule est rempli de résine, le moule est chauffé ou maintenu à température pour minimiser le temps de polymérisation de la résine. La pièce est ensuite retirée du moule pour laisser place à la pièce suivante, dans le cadre industriel.

Les matériaux composites présentent des propriétés mécaniques excellentes par rapport à leur masse volumique, et sont donc beaucoup utilisés dans l'industrie aéronautique et automobile. Cependant, les cadences de production sont assez faibles, en particulier pour le procédé RTM qui n'est utilisé que pour les productions de petites séries, et qui nécessite une maintenance régulière (nettoyage du moule en particulier). Différents aspects sont modulables pour augmenter la vitesse de production. Il est nécessaire d'optimiser le temps d'injection de la résine en plaçant au mieux le(s) point(s) d'injection(s) et en ajustant la pression d'injection tout en ne détériorant pas le renfort fibreux. Il est possible de modifier la formulation de la résine thermodurcissable, de

manière à diminuer le temps nécessaire à la polymérisation. Enfin, le cycle thermique peut être modifié pour accélérer la réaction chimique. Dans l'industrie automobile, on cherche à minimiser ainsi le temps de production sans toutefois perdre la qualité des pièces fabriquées. Les propriétés mécaniques ne doivent pas être altérées notamment, mais surtout l'aspect visuel de la pièce doit être excellent. Certaines pièces de carrosserie sont en effet réalisées directement en matériau composite. L'un des principaux problèmes rencontrés est de proposer une pièce dont le fini de surface est très bon, tout en respectant un cycle de production assez court. Le fini de surface est difficilement mesurable, car dans l'industrie automobile il s'agit d'une appréciation visuelle. Toutefois il est nécessaire d'établir une relation entre les différents paramètres du procédé et le résultat recherché, en particulier l'effet des paramètres de la cinétique de réaction et les paramètres thermiques du procédé doivent être étudiés. Connaître les propriétés thermophysiques d'un matériau composite devient alors indispensable afin de prédire son comportement lors d'un cycle de production à l'aide de logiciels de simulation. Ce mémoire propose l'étude d'un appareil expérimental destiné à mesurer la conductivité thermique d'un matériau composite.

Les objectifs de ce mémoire sont de rassembler les éléments théoriques nécessaires à la caractérisation thermique et cinétique d'un matériau composite et de valider des méthodes expérimentales pour mesurer les conductivités thermiques d'un tel matériau. Cette étude s'appuie principalement sur les travaux de Sobotka [18] et Jauffres [37]. Les travaux de Sobotka résument les différents aspects théoriques de la cinétique d'une résine polyester ainsi que les modèles de conductivité thermique transverse dans un composite. Une méthode inverse permettant de déterminer une conductivité thermique à partir de relevés de température y est aussi présentée. Le programme informatique issu de cette méthode ainsi que les modèles présentés dans les travaux de Sobotka sont utilisés dans cette étude pour la conception d'un appareil expérimental adapté à la mesure de la conductivité thermique. Ce travail de conception d'un moule thermique s'appuie sur une étude initiale de Jauffres [37] dans laquelle ont été

déterminées les dimensions minimales du moule de caractérisation de la conductivité transverse. Les chapitres 3 et 4 de cette étude ont pour objectif de modifier la conception retenue dans les travaux de Jauffres de manière à l'adapter aux besoins futurs du laboratoire.

Le chapitre 1 de ce mémoire consiste en une étude bibliographique ayant pour objectif de présenter l'avancement des travaux réalisés jusqu'ici sur la caractérisation des matériaux composites à matrice thermodurcissable. Les modèles de cinétique chimique et de conductivité thermique équivalente ayant été validés sont présentés, ainsi que les différentes méthodes expérimentales de mesure de la conductivité thermique d'un matériau composite.

L'objectif du chapitre 2 est de décrire le protocole expérimental choisi pour mesurer la conductivité thermique, ainsi que la capacité calorifique et les paramètres cinétiques d'une résine. Les modèles choisis pour représenter la conductivité thermique d'un composite en fonction de la température et de l'avancement de la réaction y sont présentés.

Le chapitre 3 présente l'étude numérique du moule destiné à mesurer la conductivité thermique transverse d'un composite. Une étude de conception y est menée afin que le moule satisfasse les conditions recherchées. Les transferts thermiques au sein du moule sont donc analysés à l'aide du logiciel LCMFlot avec des maillages bidimensionnels et tridimensionnels. La précision du moule concernant la mesure de la conductivité thermique est ensuite vérifiée en déterminant la conductivité thermique d'un matériau virtuel avec le programme d'identification par méthode inverse, à partir de relevés de température obtenus avec LCMFlot.

Dans le chapitre 4, on cherche à adapter le moule pour mesurer la conductivité thermique dans le plan des fibres d'un matériau composite. Les contraintes dues au

procédé RTM ne permettent pas de réaliser facilement des pièces épaisses; on cherche donc à modifier le moule pour obtenir une configuration qui permette d'obtenir des mesures de conductivité précises. Des maillages bidimensionnels sont utilisés avec LCMFlot pour analyser les transferts thermiques, et une solution expérimentale est proposée pour adapter le moule disponible à une telle mesure.

Le chapitre 5 présente la procédure expérimentale complète et les résultats obtenus. Les problèmes rencontrés lors de la mise en place de l'appareil expérimental et de la procédure sont aussi exposés.

Enfin, une conclusion résume les contributions scientifiques de ce mémoire, ainsi que les perspectives orientant de nouvelles directions de recherche, les expériences à réaliser pour valider entièrement le moule et les possibilités offertes pour la mesure de la conductivité thermique longitudinale.



## CHAPITRE 1

### REVUE BIBLIOGRAPHIQUE

Après la présentation du procédé de moulage par transfert de résine (Resin Transfer Moulding – RTM), ce premier chapitre fait tout d’abord une synthèse bibliographique sur la modélisation des propriétés thermiques et chimiques des composites. Des modèles cinétiques sont ensuite présentés, et les techniques usuelles permettant de les déterminer sont décrites. On fait ensuite le point sur les modèles qui prédisent les conductivités thermiques transverse et longitudinale d’un composite en fonction des propriétés et des proportions des deux phases. Enfin, quelques méthodes de détermination de la conductivité transverse d’un matériau composite sont comparées et discutées.

#### 1.1 Transfert par moulage de résine

Les matériaux composites à renforts de fibres possèdent de très intéressantes propriétés par rapport aux matériaux métalliques, comme leur faible masse volumique et une bonne résistance à la corrosion pour des rigidités et résistances à la rupture équivalentes. Ces avantages font que les matériaux composites sont utilisés dans de nombreux secteurs d'application comme les industries automobile et aérospatiale notamment. Il existe de multiples combinaisons de matériaux avec des spécificités propres ainsi que de nombreuses méthodes de fabrication des composites, dont on trouvera un exposé dans l’ouvrage de Mallick [32]. Le procédé qui fait l’objet de cette étude est le moulage par transfert de résine ou procédé RTM (*Resin Transfer Moulding*).

La Figure 1.1 montre un cycle complet de procédé RTM. Le renfort fibreux est d’abord mis à la forme de la pièce à fabriquer par différentes méthodes (découpe,

thermoformage, placement<sup>1</sup> de fibres). On obtient alors ce qu'on appelle une « préforme », qui est ensuite placée dans un moule. Après fermeture du moule, on injecte une résine thermodurcissable qui va imprégner le renfort. La réaction chimique de polymérisation est amorcée par un catalyseur. Lorsque celle-ci est terminée, le contre-moule est retiré et la pièce est éjectée. Ce procédé permet de mouler des pièces de forme complexe. Le moule requis est généralement peu coûteux, car la résine est injectée à basse pression. Pour l'instant, le RTM n'est rentable que pour des petites séries de production (de l'ordre de quelques milliers de pièces par année). Il est donc important d'optimiser le cycle de moulage, notamment par la maîtrise des paramètres thermiques, afin de diminuer le temps de cycle et d'augmenter ainsi le volume de production.

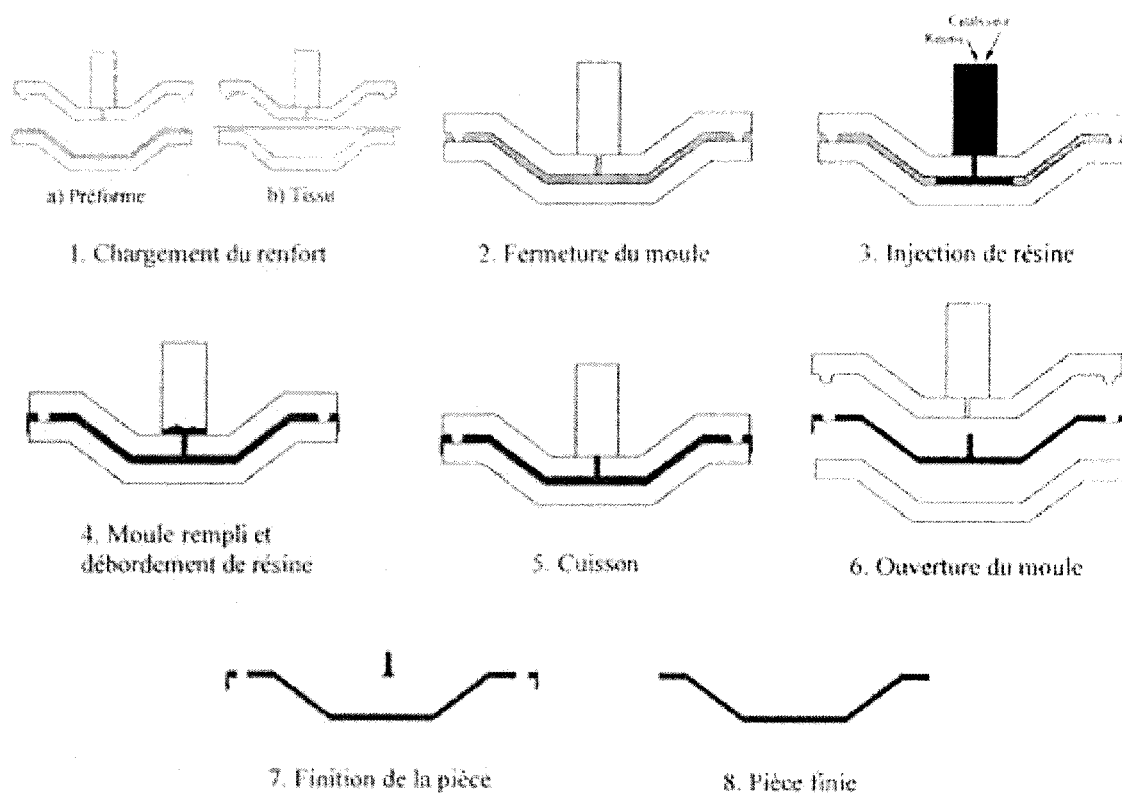


Figure 1.1 – Procédé RTM.

## 1.2 Modélisation thermique

L'aspect thermique du procédé RTM est important car il permet de mieux maîtriser l'écoulement, donc le remplissage de la pièce, ainsi que la réaction de polymérisation. Cette réaction étant exothermique [32], il faut donc composer avec une source de chaleur interne. Cela est possible par des simulations numériques (généralement au moyen de la méthode de Taylor-Galerkin [2, 4, 6]) en définissant les températures du moule et de la résine injectée. On dose aussi le catalyseur, afin d'amorcer la réaction en temps voulu et optimiser ainsi le cycle de cuisson de la pièce. Pour améliorer la productivité, il faut abaisser le temps du cycle de moulage d'une pièce. A cette fin, il est possible de préchauffer le moule. Cela induit d'importants gradients de température lors de l'injection, qui peuvent éventuellement causer des défauts, même si le cycle est effectivement écourté [1, 5]. La température devient donc une variable importante qu'il convient de maîtriser et de modéliser, afin de prendre en compte les phénomènes thermiques pendant les simulations d'injection.

Pour effectuer la simulation de l'injection, il faut tenir compte des différents phénomènes physiques qui se produisent pendant les différentes étapes du processus de fabrication: ces phénomènes sont de nature mécanique, thermique et chimique. Au niveau mécanique, il s'agit d'un écoulement visqueux en milieu poreux, dont on trouve des simulations et analyses dans la littérature [33, 34]. Notons aussi que des forces capillaires s'exercent entre les fibres et la résine quand la pression d'écoulement est faible. Enfin la viscosité de la résine varie avec la température. L'écoulement en milieu poreux est modélisé par l'équation de Darcy, où le débit de résine par unité d'aire est proportionnel au gradient de pression et inversement proportionnel à la viscosité. Il est donc important de connaître la variation de viscosité, qui est fonction de la température de la résine et du degré d'avancement de la réaction de polymérisation. Les forces capillaires sont habituellement faibles devant la pression, et on peut considérer soit

qu'elles sont négligeables, ou bien qu'elles sont prises en compte dans les termes de perméabilité [35].

Les phénomènes thermique, mécanique et chimique ne peuvent pas être étudiés séparément, parce qu'ils sont couplés. Les phénomènes thermiques interviennent sur l'aspect mécanique en modifiant la viscosité de la résine, mais aussi sur l'aspect chimique car la température a une influence importante sur la réaction chimique de polymérisation. Les aspects chimiques interagissent aussi avec les aspects thermique et mécanique : la réaction est exothermique et fait donc augmenter la température; quant à la viscosité de la résine, elle varie avec l'avancement de la réaction chimique. Le degré d'avancement de la réaction de polymérisation influence la conductivité thermique et la chaleur spécifique, qui sont également fonction de la température. Les phénomènes thermiques interagissent ainsi entre eux [23]. Mais les phénomènes mécaniques, c'est-à-dire l'écoulement convectif de la résine, ont une influence sur les transferts thermiques et sur la réaction chimique.

La modélisation des transferts thermiques lors de l'écoulement peut se faire grâce à la technique de moyenne volumique dans l'espace [27, 28], afin de surmonter les problèmes d'hétérogénéité d'un matériau dans lequel les propriétés physiques varient fortement à l'échelle locale. Dans la pièce en cours de polymérisation, les phénomènes de conduction, convection, dispersion et génération de chaleur peuvent être modélisés par l'équation de convection-diffusion de la chaleur. L'étude des transferts de chaleur lors de la polymérisation se fait en définissant tout d'abord le degré d'avancement  $\alpha$  de la réaction chimique comme le rapport de l'enthalpie de réaction dégagée pour passer de l'état initial à l'état actuel  $dh(t)$  et l'enthalpie totale de réaction  $\Delta H'$  :

$$\alpha = \frac{dh(t)}{\Delta H'} \quad (1.1)$$

$\alpha$  varie donc de 0 (réaction chimique non amorcée) à 1 (réaction chimique terminée).

L'énergie dégagée par unité de temps par la réaction est proportionnelle à la dérivée du degré d'avancement par rapport au temps (vitesse de réaction). On obtient donc d'une manière générale le système couplé suivant qui modélise le transfert de chaleur par conduction pour la résine :

$$\left\{ \begin{array}{l} \rho C_p(\alpha, T) \cdot \frac{\partial T}{\partial t} = \text{div} \left[ \lambda(\alpha, T) \cdot \vec{\text{grad}}(T) \right] + \rho X \Delta H^r \frac{\partial \alpha}{\partial t} \\ \frac{\partial \alpha}{\partial t} = F(\alpha, T) \\ + \text{conditions initiales et frontières} \end{array} \right. \quad (1.2)$$

où  $\rho$  est la masse volumique du composite,  $C_p$  sa chaleur spécifique,  $\lambda$  sa conductivité thermique et  $X$  le taux massique de résine dans le composite. La vitesse de réaction  $\partial \alpha / \partial t$  est à la fois dépendante du degré d'avancement de la réaction  $\alpha$  et de la température  $T$ . Cette dépendance s'écrit sous la forme générale de la fonction  $F$ .

On trouve aussi dans la littérature [7, 23] l'expression de la chaleur spécifique d'un composite  $C_{p_{comp}}$  selon la loi des mélanges :

$$C_{p_{comp}}(\alpha, T) = X C_{p_{res}}(\alpha, T) + (1 - X) C_{p_{fibres}}(T) \quad (1.3)$$

où  $X$  est le pourcentage en masse de résine et  $C_{p_{res}}$  et  $C_{p_{fibres}}$  sont les capacités calorifiques respectives de la résine et des fibres. Notons que dans l'expression (1.3) la chaleur spécifique des fibres n'est fonction que de la température car celles-ci ne subissent pas de transformation lors de la réaction chimique. Pour détailler l'expression

de la chaleur spécifique de la résine, on écrit la variation d'enthalpie sous l'effet de la température et de l'avancement de la réaction :

$$dH = C_p(\alpha, T)dT + \eta(\alpha, T)d\alpha \quad (1.4)$$

avec  $\eta(\alpha, T) = \frac{\partial H}{\partial \alpha}(\alpha, T)$ . Si l'on suppose que le mélange des constituants de la résine est idéal, cette fonction ne dépend pas de  $\alpha$  car l'enthalpie est une fonction extensive, soit :

$$dH = C_p(\alpha, T)dT + \eta(T)d\alpha \quad (1.5)$$

L'enthalpie étant une fonction d'état, la différentielle totale  $dH$  est exacte. Le théorème de Schwartz conduit donc à l'égalité suivante :

$$\frac{\partial C_p(\alpha, T)}{\partial \alpha} = \frac{\partial \eta(T)}{\partial T} \quad (1.6)$$

Cette dernière expression impose une variation linéaire de la chaleur spécifique en fonction du degré d'avancement. On obtient donc l'expression de la chaleur spécifique de la résine en fonction des deux valeurs mesurées pour un degré d'avancement nul  $C_{p_{res}}(0, T)$  et pour une réaction terminée  $C_{p_{res}}(1, T)$  [18, 23] :

$$C_{p_{res}}(\alpha, T) = \alpha C_{p_{res}}(1, T) + (1 - \alpha) C_{p_{res}}(0, T) \quad (1.7)$$

Cette relation correspond à une loi de mélange idéal de deux phases, dont l'une est réticulée (résine cuite) et l'autre non (résine crue). La détermination de la chaleur spécifique se fait par DSC (« *Differential Scanning Calorimetry* ») [23] qui mesure la variation d'enthalpie avec le temps en comparant les flux de chaleur en fonction de la

température et du temps entre un creuset contenant l'échantillon et un creuset vide de référence. Le principe de la DSC se rapproche de celui de l'Analyse Thermique Différentielle (ATD), qui enregistre la différence de température entre l'échantillon et un matériau de référence, dont la température de fusion et l'enthalpie totale de changement d'état sont connues avec précision.

### 1.3 Paramètres cinétiques

La polymérisation des résines thermodurcissables est une réaction chimique exothermique. La chaleur libérée par la polymérisation est en général très importante et contribue à augmenter la température du matériau. A la surface du moule, la chaleur est facilement dégagée par l'outillage. On rencontre moins de problèmes reliés à une éventuelle dégradation du matériau sur des pièces de faible épaisseur. Cependant, pour les pièces épaisses, la conductivité thermique d'un composite étant faible, la température interne augmente rapidement, dépassant largement la température de cuisson et pouvant devenir excessive au point de dégrader la résine [29]. Ceci peut causer une détérioration de la qualité de la pièce et la perte de ses propriétés mécaniques.

La cinétique de polymérisation peut être modélisée de plusieurs manières. En général, la vitesse de réaction est modélisée en fonction du degré d'avancement et de la température. D'une manière générale, on distingue deux approches : les modèles phénoménologiques et les modèles mécanistiques [30]. Un modèle phénoménologique est généralement exprimé au moyen d'une équation relativement simple, qui propose une représentation empirique des effets exothermiques et ne prend pas en compte les détails de la manière dont les constituants chimiques prennent part à la réaction. Les modèles mécanistiques sont obtenus en prenant en compte ces détails. Bien que les modèles mécanistiques donnent de meilleures prédictions et fournissent une interprétation des phénomènes, ils ne sont pas toujours accessibles à cause de la complexité de la réaction.

De plus, ils requièrent en général plus de paramètres à caractériser que les modèles phénoménologiques, qui sont utilisés la plupart du temps. Ramis et Salla [19, 20] ont employé par exemple des modèles phénoménologiques pour étudier l'influence des catalyseurs et promoteurs sur la cuisson d'une résine polyester insaturé.

Les modèles phénoménologiques catalytiques et auto-catalytiques [21, 23] supposent qu'une seule réaction chimique permet de représenter le processus entier de cuisson. Le plus simple est le modèle catalytique :

$$\frac{d\alpha}{dt} = k(1 - \alpha)^n \quad (1.8)$$

où  $n$  est l'ordre de la réaction et  $k$  obéit à une loi du type de la loi d'Arrhenius par rapport à la température,  $E$  est l'énergie d'activation de la réaction chimique,  $k_0$  une constante pré-exponentielle,  $R$  la constante universelle des gaz parfaits et  $T$  la température en degrés kelvin :

$$k = k_0 \exp(-E/RT) \quad (1.9)$$

Une représentation catalytique d'ordre  $n$  prévoit un taux maximum de réaction au temps initial  $t=0$ , ce qui n'est pas le cas pour une réaction de polymérisation, qui est plutôt de type auto-catalytique. Un modèle plus équilibré a donc été développé, le modèle auto-catalytique, qui permet de prendre en compte le phénomène d'accélération de la réaction chimique :

$$\frac{d\alpha}{dt} = k \alpha^m (1 - \alpha)^n \quad (1.10)$$

L'efficacité de ces modèles a été vérifiée pour une grande partie des résines thermodurcissables. Toutefois, le modèle le plus répandu reste celui de Kamal et Sourour



[22], qui regroupe les deux précédents modèles en un seul et permet de représenter correctement à la fois la cuisson d'une résine époxy et d'un polyester insaturé :

$$\frac{d\alpha}{dt} = (k_1 + k_2 \alpha^m)(1 - \alpha)^n \quad (1.11)$$

où  $k_1$  et  $k_2$  sont des constantes d'Arrhenius (dont  $E_1$  et  $E_2$  sont les énergies d'activation, qui représentent la nature des réactions catalytique et auto-catalytique). Les paramètres  $m$  et  $n$  peuvent prendre des valeurs non entières et décrivent l'ordre du mécanisme de cuisson.

Mentionnons aussi le modèle de Bailleul [23], où la fonction de température arrhénienne est multipliée par une fonction du taux de dégagement de la source thermique  $G(\alpha)$ . La vitesse de réaction prend alors la forme suivante :

$$\frac{d\alpha}{dt} = k_0 \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) G(\alpha) \quad \text{avec } G(\alpha) = \begin{cases} > \alpha \text{ pour } 0 \leq \alpha < 1 \\ = 0 \text{ pour } \alpha = 1 \end{cases} \quad (1.12)$$

Le passage de la transition vitreuse est pris en compte dans ce modèle en imposant  $G(\alpha) = 0$  si  $T < T_g(\alpha)$  (Température de transition vitreuse en fonction du degré d'avancement de la réaction chimique).

Dans tous les modèles que nous venons de décrire, il est possible d'introduire une période d'induction qui permet de prendre en compte un laps de temps durant lequel le dégagement de chaleur est inhibé. Cette période d'induction obéit à sa cinétique propre qui est représentée par une fonction intégrale  $\xi$ , dépendante de l'histoire thermique, ayant la dimension d'un temps :

$$\xi = t_{ref} - \int_0^{t_{ind}} \exp\left(-B\left(\frac{T_{ref}}{T(t)} - 1\right)\right) dt \quad (1.13)$$

où  $t_{ref}$  et  $B$  sont les paramètres à déterminer expérimentalement. Cette fonction est ensuite introduite dans la cinétique en multipliant le terme  $\partial\alpha/\partial t$  par la fonction  $W(\xi)$  qui est nulle si la fonction d'induction  $\xi$  est positive :

$$W(\xi) = \begin{cases} 0 & \text{si } \xi > 0 \\ 1 & \text{si } \xi \leq 0 \end{cases} \quad (1.14)$$

Des études cinétiques sont nécessaires pour déterminer expérimentalement les paramètres de ces différents modèles. Une estimation des paramètres peut généralement être obtenue à partir de mesures des pics exothermiques, de la vitesse de réaction à ces pics pour des séries d'expériences isothermes. Une des méthodes les plus utilisées dans la littérature pour l'étude de la cinétique de réaction est la DSC, que ce soit en mode isotherme ou non-isotherme. La comparaison avec l'Analyse Thermique Différentielle (ATD) montre que la DSC est l'approche la plus efficace [30]. En effet, l'utilisation de l'ATD pour obtenir des informations quantitatives sur la cinétique de réaction de résines thermodurcissables est limitée à cause de la non-uniformité de la température dans l'échantillon pendant les mesures. Lors de mesures effectuées par ATD sur des solutions diluées, la température dans l'échantillon peut être maintenue uniforme pour des taux de chauffage faibles. Mais les difficultés pour maintenir cette uniformité apparaissent si l'échantillon devient solide, à moins qu'un échantillon très petit soit utilisé. En conséquence, une petite différence de température dans l'échantillon peut engendrer une différence significative de taux de réaction [40]. Un autre inconvénient inhérent à l'ATD est l'hypothèse que les propriétés thermiques sont constantes sur l'ensemble des températures étudiées. Comme les propriétés thermiques des résines thermodurcissables dépendent à la fois de la température et du degré d'avancement de la réaction chimique, la DSC est une méthode plus fiable car elle mesure directement le flux de chaleur [40].

Parmi les méthodes utilisant la DSC, on peut citer les techniques isothermes et les techniques non isothermes ou dynamiques. Les mesures isothermes ont l'inconvénient de

prendre du temps. Il peut être aussi difficile de déterminer avec précision le taux de réaction à basse température, car celui-ci est trop faible. Il est donc parfois difficile de trouver la dépendance de la constante  $k$  avec la température. Il est possible de surmonter ces difficultés en utilisant une technique non-isotherme comme le balayage en température.

Les deux types de méthodes ont été comparés, et il s'est avéré que les résultats obtenus étaient fréquemment différents. Toutefois, les paramètres cinétiques évalués en utilisant des méthodes isothermes et non-isothermes étaient relativement proches. La différence entre les deux proviendrait plus probablement de la faiblesse des modèles cinétiques plutôt que des techniques expérimentales employées.

#### **1.4 Modélisation de la conductivité thermique**

La modélisation de la conductivité thermique d'un matériau composite doit tenir compte de l'inhomogénéité du matériau. En appliquant une approximation homogène au matériau, on peut obtenir des modèles simples pour les conductivités thermiques transverse et longitudinale, qui sont validés dans le cas de renforts à fibres unidirectionnelles.

##### **1.4.1 Approximation homogène**

Pour modéliser l'évolution de la conductivité thermique en fonction de la température et de l'avancement de la réaction, il faut tenir compte des deux matériaux constituant le composite, dont les contributions à la conductivité doivent être analysées. La première démarche consiste à étudier la possibilité de considérer un milieu poreux comme homogène et à développer un modèle fondé sur la loi des mélanges. Un tel

modèle peut présenter des limites au niveau de la répartition des pores, qui doit être aléatoire et uniforme. Sa validité a été vérifiée par Bauer [8] pour n'importe quelle conductivité, forme, nombre et concentration de pores. L'application de l'approximation homogène à la conduction transverse a été étudiée par Pitchumani et Yao [7] dans le cas de fibres unidirectionnelles. Un critère quantitatif fondé sur une épaisseur critique est établi pour l'homogénéisation. Une telle approximation peut engendrer de grosses erreurs d'analyse.

#### **1.4.2 Modélisation de la conductivité thermique transverse**

Tai [13] applique la loi des mélanges à une cellule unitaire et obtient des expressions pour la conductivité thermique équivalente correspondant à un flux de chaleur unidimensionnel dans le cas d'un matériau composite renforcé de fibres orthogonales. Il constate que prendre pour cellule une forme cubique ou cylindrique importe peu en ce qui concerne le flux de chaleur, car c'est seulement le taux de fibres volumique qui compte vraiment. Dans les exemples étudiés, la conductivité thermique varie linéairement avec le taux de fibres. Cette linéarité est expliquée par la grande différence entre les conductivités transverse et longitudinale, qui fait que la partie dominante du flux de chaleur s'établit dans le sens longitudinal. Ces résultats sont cependant valables dans une situation idéale, car les imperfections ne sont pas prises en compte. Cette approche constitue néanmoins une modélisation raisonnable de la conductivité thermique transverse d'un matériau composite.

Une telle modélisation simple peut donc être obtenue par la loi des mélanges en prenant en compte les conductivités de la matrice et des fibres. Le modèle de Springer et Tsai [12, 23] est couramment utilisé pour découpler l'influence des fibres et de la résine. Le taux de fibres volumique  $v_f$  intervient également dans ce modèle qui s'écrit comme suit :

$$\lambda_{\perp} = \lambda_m \frac{(1 + \nu_f)\lambda_f + (1 - \nu_f)\lambda_m}{(1 - \nu_f)\lambda_f + (1 + \nu_f)\lambda_m} \quad (1.15)$$

Dans cette formule,  $\lambda_m$  représente la conductivité thermique de la résine et  $\lambda_f$  la conductivité thermique des fibres. Ce modèle provient de l'application de la loi de conduction de la chaleur à des couches de matériaux différents disposés en parallèle et en série (analogie électrique) pour un réseau de cylindres [13]. Il a été validé par Bailleul [23] sur un préimprégné unidirectionnel en fibres de verre / résine époxy. En modélisant la conductivité thermique de la résine en fonction de l'avancement de la réaction par une loi des mélanges sur les conductivités des résines crue et cuite et en utilisant ensuite le modèle de Tsai, on obtient finalement la conductivité thermique du matériau composite en fonction de la température, de l'avancement de la réaction et des valeurs de la conductivité thermique de la résine et des fibres. La procédure est détaillée dans le rapport de Sobotka [18] ainsi que dans le chapitre 2 de cette étude.

### 1.4.3 Modélisation de la conductivité thermique longitudinale

En ce qui concerne la conductivité thermique longitudinale, un modèle simple est donné directement par la loi des mélanges, qui permet de déterminer la conductivité thermique de deux matériaux en parallèle. Ce modèle s'applique à un matériau composite dont les fibres sont unidirectionnelles :

$$\lambda_{long} = \nu_f \lambda_f + \nu_m \lambda_m \quad (1.16)$$

Dans le cas d'un pli dont les fibres sont orientées selon un axe  $x$  formant un angle  $\theta$  non nul avec l'axe du matériau, la conductivité thermique longitudinale  $\lambda_{xx}$  selon l'axe  $x$  est obtenue par rotation d'un angle  $\theta$  à partir des axes principaux de conductivité :

$$\lambda_{xx} = \lambda_{11} \cos^2 \theta + \lambda_{22} \sin^2 \theta \quad (1.17)$$

#### 1.4.4 Validation des modèles

Les deux modèles présentés ci-dessus ont été validés par Farmer et Covert [12] qui ont mesuré les conductivités thermiques d'un matériau composite thermodurcissable par la méthode de la plaque chaude gardée et comparé les résultats à ces modèles. Ils ont établi que le modèle (1.15) n'est valable que pour une géométrie connue (un réseau de cylindres) et ont cherché à identifier un modèle pour un réseau de fibres dont la géométrie est aléatoire. Ils ont identifié la relation (1.15) comme la meilleure borne inférieure possible pour un modèle de ce type, la borne supérieure étant donnée par :

$$\lambda_{\perp \text{sup}} = \lambda_f \frac{(1 + \nu_m) \lambda_m + (1 - \nu_m) \lambda_f}{(1 - \nu_m) \lambda_m + (1 + \nu_m) \lambda_f} \quad (1.18)$$

Ils ont aussi mesuré la conductivité thermique longitudinale du matériau composite selon des axes formant un angle de 0 à 90 degrés avec l'axe des fibres. Ils ont ensuite comparé leurs résultats expérimentaux avec la loi des mélanges (1.16) et obtenu de très bons résultats. Ils ont finalement effectué les mêmes mesures sur un laminé contenant plusieurs plis à différents angles. Le modèle simple choisi pour un tel laminé, dérivé des lois classiques sur les laminés, s'est montré suffisamment précis, puisque les valeurs obtenues par la modélisation étaient toujours à l'intérieur de l'incertitude expérimentale.

### 1.5 Méthodes de détermination de la conductivité thermique

Grâce aux modèles de conductivité thermique, diverses méthodes pourront être développées pour mesurer ce paramètre. On utilise en général des thermocouples afin d'obtenir les profils de température. Tervola [10] présente par exemple une méthode numérique pour déterminer la conductivité thermique d'un matériau homogène à partir de profils de température mesurées [10]. Un problème d'optimisation est posé dans lequel l'équation de la chaleur apparaît comme une contrainte, qui est résolue par une technique d'éléments finis à chaque itération. Cependant, le problème est mal conditionné numériquement, car les mesures expérimentales ne sont pas exactes. Dans le cas des méthodes inverses par exemple, même si les équations du modèle sont exactes, il peut exister des situations où le minimum du critère à minimiser est très sensible à de faibles erreurs de mesure [39].

Les méthodes de détermination de la conductivité thermique peuvent être classées en trois grands groupes [25] :

- 1) Méthodes en régime permanent
- 2) Méthodes en régime variable
- 3) Méthodes inverses

Dans la première famille, le temps n'intervient pas et ces méthodes permettent d'obtenir uniquement la conductivité thermique. Les méthodes en régime variable sont actuellement les plus utilisées. Elles consistent à appliquer une perturbation thermique sur un échantillon à l'équilibre et à mesurer l'évolution des températures en fonction du temps. Elles se différencient par la nature de la perturbation, le type de mesure et la géométrie du problème. Les mesures en **régime permanent** se caractérisent par la mesure simultanée d'un flux de chaleur traversant l'échantillon et d'une différence de température.

### 1.5.1 Méthodes en régime permanent

La méthode de la plaque chaude gardée [23] est une méthode en régime permanent utilisée pour les isolants, dont les matériaux composites font partie. La géométrie est une plaque de forme cylindrique ou parallélépipédique de faible épaisseur par rapport à ses dimensions transverses (Figure 1.2). Deux échantillons sont disposés de part et d'autre d'un élément chauffant (plaque chaude). Les échantillons sont refroidis par les puits de chaleur (plaques froides). L'ensemble est isolé thermiquement. L'anneau entourant la plaque chaude peut être chauffé afin d'ajuster sa température à celle de la plaque pour éliminer les pertes radiales de chaleur. On obtient alors un régime permanent dans lequel les deux échantillons sont soumis à une différence de température  $\Delta T$ .

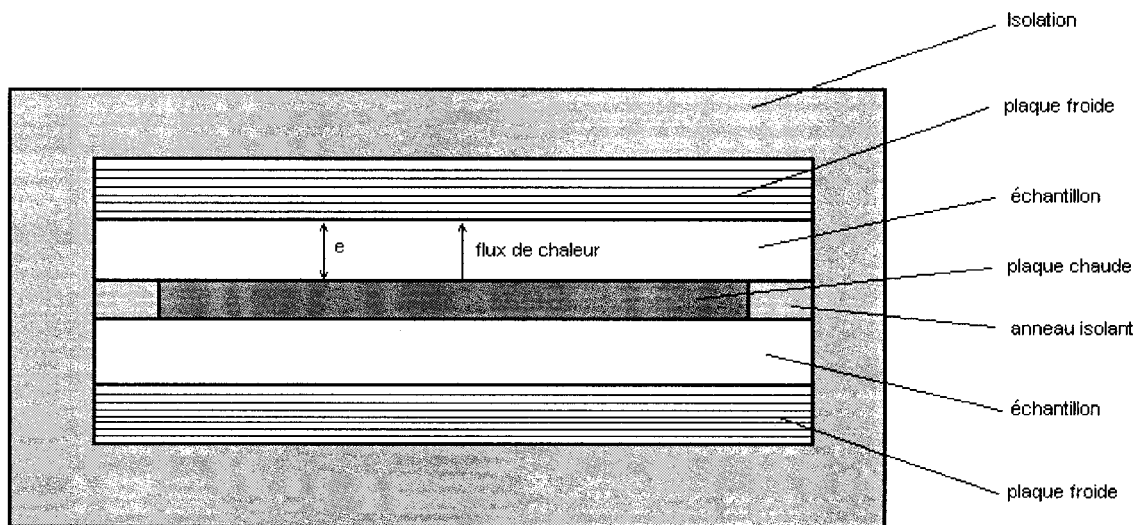


Figure 1.2 – Méthode de la plaque chaude gardée.

Le flux est obtenu directement par la mesure de la puissance dégagée dans l'enroulement principal de la plaque chauffante. Les appareillages peuvent fonctionner pour des gammes de température variées. La mise en œuvre expérimentale d'un tel dispositif est délicate dans tous les cas. La connaissance de l'épaisseur de l'échantillon, de l'écart de température entre les deux faces et de la densité de flux d'énergie utilisée pour le chauffage permet d'obtenir directement la conductivité thermique à travers la relation de



Fourier. Un tel dispositif pose des problèmes pour mesurer la conductivité thermique d'un matériau composite cru, car il ne faut pas initier la réaction chimique et le temps nécessaire pour atteindre l'équilibre thermique est important.

Citons aussi la méthode du fil chaud, qui fait partie des méthodes en régime quasi-établi et qui consiste à placer un fil résistif entre deux plaques de matériau isolant [25]. Les plaques sont soumises à un créneau en flux, délivré sous forme d'effet Joule par le fil résistif. Si le fil est supposé infiniment long et de rayon négligeable, le transfert est radial et la conductivité thermique peut être identifiée à partir de l'évolution de la température en un point donné. Cette méthode qui apparaît pourtant plus simple est en fait difficile à mettre en œuvre, car un étalonnage très précis du fil chaud est nécessaire. On trouve assez simplement la conductivité en fonction de la puissance de chauffage du fil.

### **1.5.2 Méthodes en régime transitoire**

Les méthodes de mesure en régime transitoire se caractérisent par la mesure d'une seule (ou deux) température(s) rapidement variable(s) avec le temps. Ces mesures permettent d'obtenir la diffusivité thermique. La mesure est simple, mais les modèles et la méthode d'identification sont généralement complexes. La perturbation thermique est du type Dirac et plusieurs techniques sont regroupées sous le nom générique de « méthode flash ». Le principe de base initial de cette méthode est le suivant : un échantillon cylindrique à faces parallèles est soumis sur l'une de ses faces (dite face avant) à une impulsion thermique de courte durée. La mesure de la réponse en température de l'échantillon sur la face opposée (dite face arrière) permet d'identifier la diffusivité thermique du matériau. Encore une fois, ces méthodes sont assez délicates à mettre en œuvre, et sont de plus généralement utilisées pour des matériaux dont les propriétés ne dépendent pas de la température. L'approximation homogène pose aussi un

problème dans le cas des matériaux composites à cause de la faible épaisseur de l'échantillon.

### 1.5.3 Méthodes inverses

Les méthodes inverses ont beaucoup apporté dans le domaine de la métrologie thermique [24], en facilitant le choix d'un modèle mathématique approprié, en permettant de déterminer des paramètres de sensibilité et d'une manière générale, en favorisant une conception optimale des expériences. Une méthode inverse consiste à résoudre le problème direct en se donnant une conductivité initiale. On compare alors les températures calculées avec les valeurs mesurées dans la pièce pendant l'expérience et on estime un critère d'écart, comme par exemple un critère des moindres carrés (somme des carrés des différences entre températures mesurées et calculées [18]). La conductivité initiale est alors modifiée de manière à minimiser le critère d'écart par itérations successives. Un seuil de précision est fixé pour arrêter les itérations. On peut citer comme exemple de méthode inverse la méthode "flash" face arrière, ou encore la méthode de la sphère, du fil ou du plan chaud [25]. Ces trois méthodes suivent le même principe mais permettent d'identifier la conductivité suivant un nombre différent d'axes : la sphère chauffante permet de résoudre un problème tridimensionnel, le fil chauffant un problème bidimensionnel, et enfin le plan chaud se limite à des transferts thermiques unidirectionnels.

On trouve dans la littérature divers exemples d'utilisation des méthodes inverses afin de déterminer la conductivité thermique, parfois simultanément avec la capacité calorifique. Huang et Ozisik [15] proposent par exemple une méthode afin d'améliorer la valeur initiale des paramètres et éviter ainsi de trop nombreuses itérations, voire une absence de convergence de la solution. Leur étude se place dans le cas d'une conductivité et d'une capacité thermique qui varie linéairement avec la température.

Huang et Han [14] utilisent une méthode inverse par gradients conjugués pour déterminer simultanément la conductivité en fonction de la température et la capacité thermique. Ils examinent la précision de leur analyse inverse en utilisant des solutions exactes ou approchées de l'équation de la chaleur. Chen et Lin [16] ont poursuivi les travaux de Tervola [10] et de Huang et Ozisik [15] en incluant des approximations numériques fondées sur la transformation de Laplace. Ces deux études montrent que l'on n'a pas besoin d'information à priori sur la forme des fonctions inconnues.

### **1.6 Conclusion**

Les matériaux composites à résine thermodurcissable sont des matériaux complexes qui nécessitent des modèles à la fois simples et précis. Dans le cas de la cinétique de la réaction de polymérisation, des modèles comme celui de Kamal-Sourour ou celui de Bailleul, couplés à un modèle d'inhibition, sont efficaces pour bien décrire l'avancement de la réaction chimique, ce qui permettra de simuler le comportement de la résine lors d'une montée en température afin d'optimiser le cycle de chauffage nécessaire à la caractérisation thermique du matériau composite. La DSC (Differential Scanning Calorimetry) est la méthode la plus fiable pour ce type d'étude. Il est aussi possible de déterminer la capacité calorifique d'une résine par DSC ; ce paramètre est très important car on le considère connu lors d'une caractérisation de conductivité thermique par méthode inverse.

Des modèles simples pour les conductivités thermiques transverse et longitudinale d'un composite à fibres unidirectionnelles ont été validées. Elles permettent de retrouver ces conductivités en fonction du taux de fibres et du degré d'avancement de la réaction de polymérisation, à partir de mesures sur le composite cru puis cuit.

Parmi les méthodes possibles pour identifier la conductivité thermique d'un matériau, les méthodes inverses sont les plus adaptées aux spécificités des matériaux composites. Les méthodes en régime permanent sont peu adaptées à cause de la réaction

chimique qui a lieu dans la résine. On dispose donc des méthodes et des modèles théoriques nécessaires afin de déterminer les conductivités thermiques d'un matériau composite.

## **CHAPITRE 2**

### **PRÉSENTATION DU PROTOCOLE EXPÉRIMENTAL ET DE LA MÉTHODE INVERSE**

L'objectif de ce chapitre est de décrire le protocole expérimental et la méthodologie utilisés pour mesurer la conductivité thermique transverse d'un matériau composite, ainsi que le principe de l'appareillage expérimental. Ce chapitre contient les informations présentées dans l'article soumis au colloque Canada-Japon 2002 [38]. Les protocoles expérimentaux pour mesurer la chaleur spécifique et la conductivité thermique sont présentés, ainsi que la méthode inverse utilisée pour déduire la conductivité thermique à partir de relevés de température à travers l'épaisseur de la pièce. La méthode est validée par des résultats expérimentaux obtenus par Sobotka [18] pour une résine polyester.

#### **2.1 Protocole expérimental**

L'objectif est de déterminer expérimentalement la conductivité thermique transverse d'une pièce composite épaisse. Le protocole expérimental comporte trois étapes :

- 1- Détermination de la chaleur spécifique  $C_p$ .
- 2- Préparation des échantillons (degré de cuisson nulle).
- 3- Détermination de la conductivité thermique transverse  $\lambda_{\perp}$  à l'aide d'une méthode inverse.

### 2.1.1 Principe de l'appareillage expérimental

L'appareillage expérimental doit permettre le moulage d'une pièce par RTM (Resin Transfer Moulding) et la mesure de la température à travers l'épaisseur du composite dans les états cru et cuit. Il est composé d'un moule, d'un système de chauffage, d'une presse et d'un système d'acquisition de données. Un pot de pression contrôle la pression d'injection (Figure 2.1).

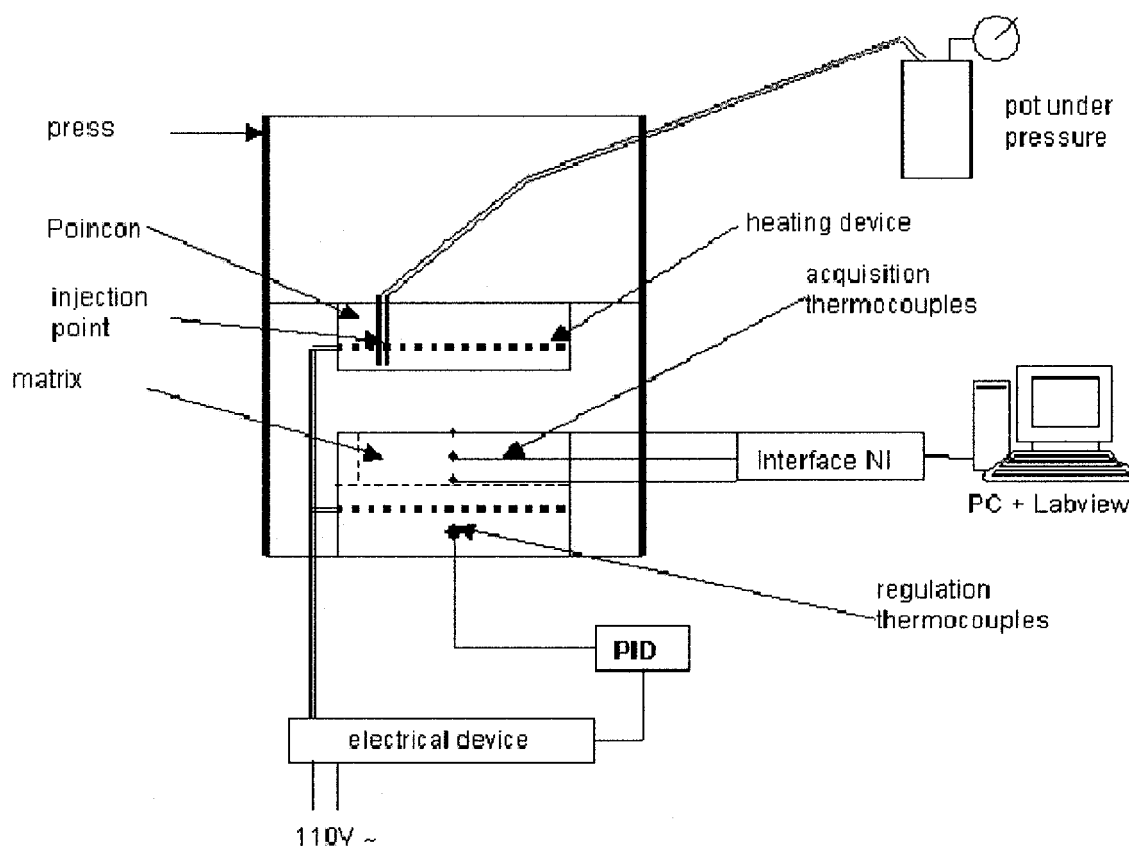


Figure 2.1 – Schéma de l'appareillage expérimental pour mesurer la conductivité transverse.

La méthode inverse nécessite d'effectuer des relevés de température dans le temps à trois endroits au moins à travers l'épaisseur de l'échantillon lors d'une rampe de chauffage ou de refroidissement. Pour obtenir des résultats satisfaisants, il faut que le gradient de

température soit suffisamment grand par rapport aux perturbations mesurées. A partir des résultats préliminaires de Sobotka [18] obtenus par simulation numérique, une épaisseur de 15 mm a été choisie pour la cavité du moule. La résine est injectée par la face supérieure du moule à travers un point d'injection d'un diamètre compris entre 5 et 10 mm afin d'obtenir un débit suffisant. Le point d'injection est situé sur un côté du moule où les fibres sont absentes, afin d'obtenir un front de résine rectiligne. Le moule est en métal à cause des hautes températures impliquées et des propriétés mécaniques requises pour supporter la pression d'injection. La bonne conductivité thermique des métaux assure une température uniforme sur les deux plateaux du moule. Ceci permet d'obtenir un transfert de chaleur unidirectionnel à travers l'épaisseur du composite. L'aluminium a été préféré à l'acier pour sa conductivité thermique plus élevée. Le moule est finalement isolé sur toutes ses faces. Il est possible d'utiliser un composite à matrice époxy à cette fin. Une conception préliminaire d'un tel moule est disponible dans le rapport de Jauffres [37].

Des simulations ont été conduites pour déterminer la plus petite taille possible du moule de caractérisation thermique afin de minimiser le coût et les temps de chauffage et de refroidissement requis par les expériences. Pour une pièce de 100 x 100 mm (plus la zone d'injection), les transferts de chaleur peuvent être considérés comme unidirectionnels dans la zone où les relevés de température sont effectués. L'appareil expérimental doit permettre de varier l'épaisseur des pièces afin de caractériser la conductivité thermique en fonction du taux de fibres. Dans le but d'obtenir une température homogène dans un moule relativement petit, des tubes chauffants d'un diamètre de 5 mm ont été choisis. Ceux-ci seront placés régulièrement pour assurer un chauffage uniforme. Ces éléments chauffants, associés à des thermocouples de régulation et à un système de refroidissement (par gaz ou liquide), permettent de réguler totalement la température du moule.

### 2.1.2 Détermination de la chaleur spécifique Cp

L'étape préliminaire avant de mesurer la conductivité thermique consiste à déterminer la chaleur spécifique massique du matériau en fonction de la température et de l'avancement de la réaction. Celle-ci est obtenue au moyen d'une analyse sur DSC classique pour les résines crue ( $C_0$ ) et cuite ( $C_1$ ). La chaleur spécifique pour un degré d'avancement de la réaction  $\alpha$  est ensuite obtenue par une loi des mélanges :

$$C_{p_{res}}(\alpha, T) = \alpha C_1(T) + (1 - \alpha) C_0(T)$$

$$\text{avec } \begin{cases} C_0(T) = C_{p_{res}}(0, T) \\ C_1(T) = C_{p_{res}}(1, T) \end{cases} \quad (2.1)$$

Le problème consiste donc à mesurer les capacités calorifiques  $C_0$  et  $C_1$  avant (résine crue) et après (résine cuite) la réaction chimique. La chaleur spécifique du matériau cuit est facile à obtenir car la réaction chimique exothermique est terminée et n'intervient plus dans le bilan thermique. La capacité calorifique de la résine crue  $C_0$  est mesurée pour la résine sans catalyseur afin d'éviter la réticulation pendant les mesures. Les résultats de la Figure 2.2 ont été obtenus pour un copolymère polyester / styrène.

La chaleur spécifique en fonction de la température peut être obtenue pour la résine crue et cuite (T en °C) après lissage des courbes :

- résine crue :  $C_p(T) = 2.100 * T + 1631.6 \text{ (J/kg.K)}$
- résine cuite :  $C_p(T) = 4.7086 * T + 1157.6 \text{ (J/kg.K)}$



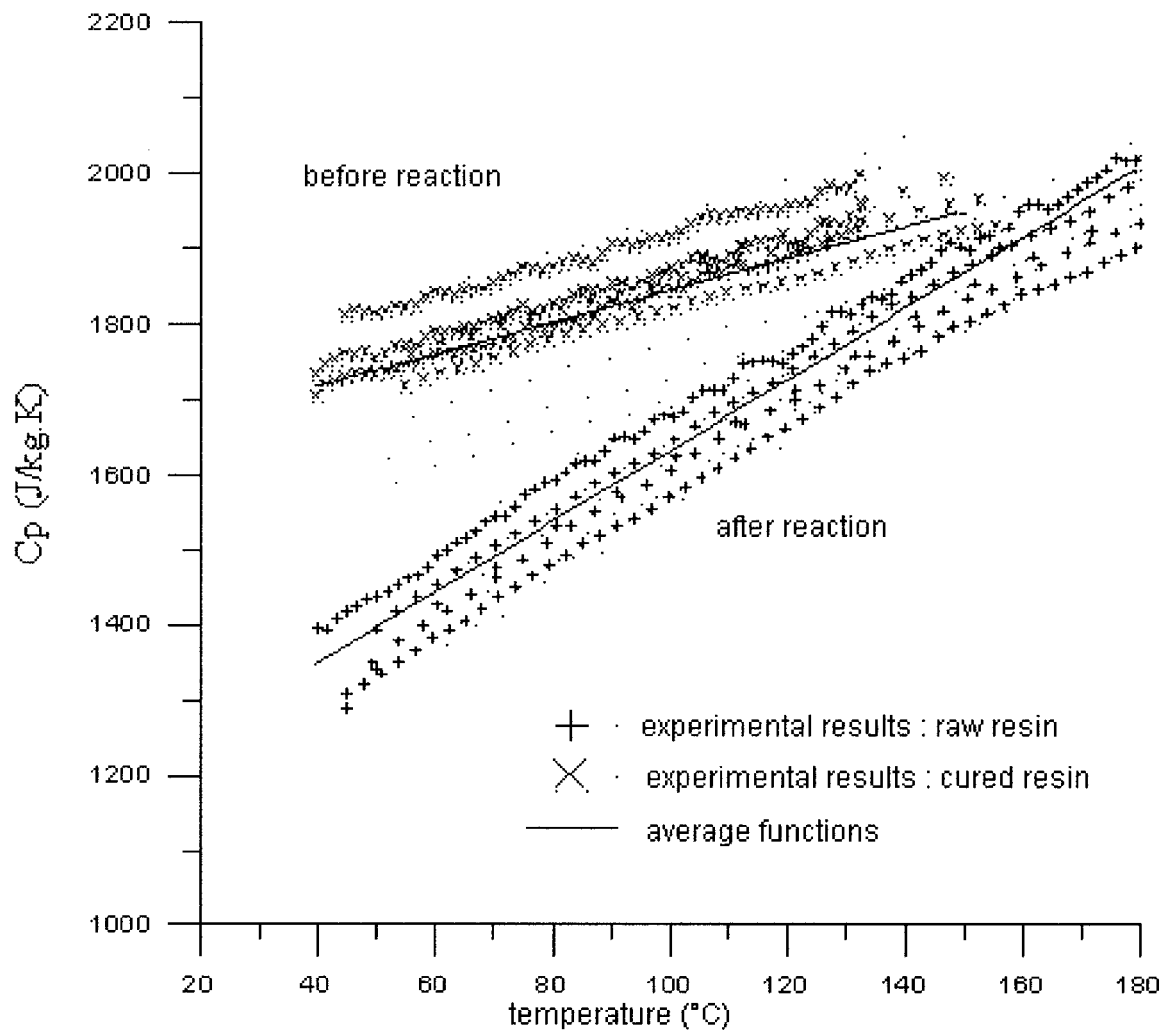


Figure 2.2 – Chaleur spécifique massique  $C_p$  pour les résines crue et cuite en fonction de la température  $T$  (cf Sobotka [18]).

Ces résultats sont satisfaisants car l'écart maximal entre les valeurs mesurées et la courbe moyenne de chaleur spécifique massique est de 6% pour la résine crue et de 4% pour la résine cuite.

### 2.1.3 Préparation des échantillons

Les échantillons sont coupés dans le renfort et empilés jusqu'à l'épaisseur nécessaire. Environ 15 mm d'épaisseur de matériau est nécessaire pour obtenir de bonnes conditions d'expérimentation (gradient de température important, transfert de chaleur unidirectionnel). Des thermocouples chromel-alumel sont insérés entre les plis dans le plan des fibres. Un maximum de sept thermocouples peut être utilisé pour les mesures et un minimum de trois est obligatoire : deux pour les conditions aux limites, c'est-à-dire dans les plis les plus proches des deux parois du moule, et un thermocouple d'identification à mi-épaisseur. La position exacte des thermocouples doit être mesurée au microscope : l'échantillon est coupé après l'expérience dans ce but.

### 2.1.4 Détermination de la conductivité thermique

La méthode utilisée par Sobotka (18) pour déterminer la conductivité thermique est fondée sur une analyse inverse du problème de conduction. Connaissant les conditions aux limites sur les plateaux supérieur et inférieur, la conductivité thermique peut être déduite des relevés de température obtenus dans le cœur de la pièce. Un cycle thermique spécifique permet d'obtenir ces relevés (Figure 2.3) :

- (1) état isotherme initial à la température  $T_0$ ;
- (2) rampe de montée en température pendant laquelle la conductivité du matériau cru est déterminée ;
- (3) plateau à haute température  $T_1$  afin de finir la cuisson du matériau ;
- (4) refroidissement du moule et second état isotherme ;
- (5) nouvelle augmentation de température pendant laquelle est déterminée la conductivité du matériau cuit.

Les températures  $T_0$  et  $T_1$  sont variables d'une expérience à l'autre et dépendent à la fois de la résine étudiée et de l'intervalle de température sur lequel on veut déterminer la conductivité thermique.

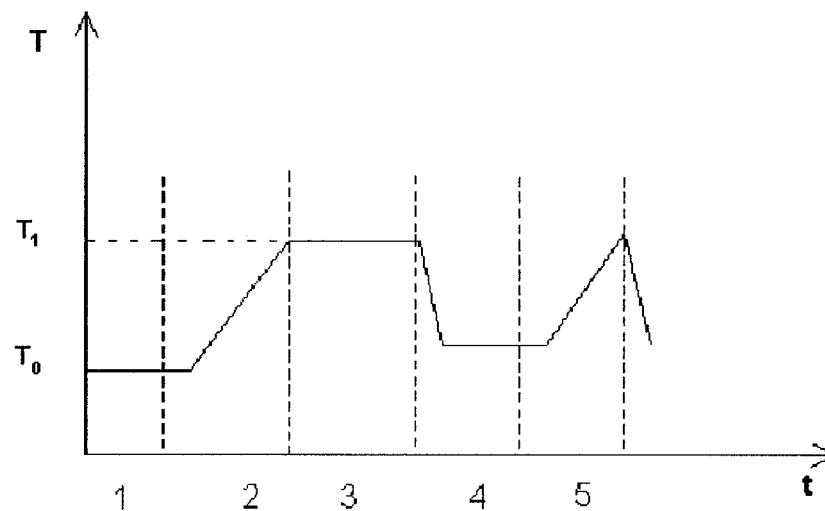


Figure 2.3 – Cycle de chauffage typique du moule de mesure.

En fonction de la cinétique de la résine étudiée, il est possible d'effectuer une unique injection (méthode ci-dessus) ou d'en effectuer deux. En effet, la réaction chimique exothermique s'initie au cours de la rampe de chauffage, et crée donc une source de chaleur dans le système étudié. Il est donc nécessaire de connaître jusqu'à quel temps de l'expérience on peut considérer la résine comme crue (la résine est considérée crue pour un taux de cuisson de moins de 1%). Pour obtenir une caractérisation du composite avec résine crue à des températures plus élevées, il est possible d'effectuer une caractérisation de la résine sans catalyseur. La réaction s'initiera ainsi plus tard ou ne s'initiera pas du tout, suivant le matériau étudié. Dans le cas où la résine ne polymérise pas, il faut expulser la résine crue du moule avec de la résine catalysée. On pourra avoir alors l'apparition d'irrégularités dans la plaque ainsi fabriquée (bulles d'air, résine non catalysée et donc non polymérisée emprisonnée dans le composite). Il est donc à priori préférable dans ce cas-ci de refaire une expérience avec de la résine catalysée que l'on

injectera directement, et dont on analysera les relevés de température indépendamment de la première expérience avec de la résine crue.

La méthode est donc identique pour les conductivités du matériau cru et cuit. La méthode inverse consiste à résoudre le problème direct du transfert de chaleur unidirectionnel (Equation 2.2) à partir d'une estimation initiale de la conductivité. On obtient ainsi l'évolution dans le temps de la température en tout point de la pièce.

$$\begin{cases} \frac{\partial}{\partial x} \left[ \lambda(T) \frac{\partial T}{\partial x} \right] = \rho \cdot C_p(T) \cdot \frac{\partial T}{\partial t} & 0 < x < L \\ T(0, t) = T_1(t) & t > 0 \\ T(L, t) = T_2(t) & t > 0 \\ T(x, 0) = T_0(x) & 0 < x < L \end{cases} \quad (2.2)$$

Les températures calculées sont alors comparées avec les mesures réelles. Un critère de moindres carrés  $J(\lambda)$  représentant la différence entre les températures mesurées et les températures calculées est alors évalué et la conductivité estimée est modifiée de manière à minimiser ce critère [18]. Cette étape est répétée jusqu'à obtenir une précision suffisante sur le critère.

## 2.2 Modèles et validation numérique

### 2.2.1 Modèle de conductivité thermique effective

Pour modéliser l'évolution de la conductivité thermique en fonction de la température et de l'avancement de la réaction, il est nécessaire de prendre en compte la non-homogénéité du matériau composite. Quand la conductivité est mesurée, les fibres et la matrice ont des contributions différentes. Les variations entre les états cru et cuit ne peuvent être dues qu'à la résine, car le renfort ne subit pas de modification chimique ou

mécanique et n'est donc pas modifié structurellement pendant la transformation de la résine. On peut trouver dans la littérature plusieurs modèles donnant la conductivité transverse d'un composite en fonction du taux de fibres et des conductivités de la matrice et des fibres. Le modèle simple de l'équation (1.15) du chapitre précédent est retenu. Ce modèle, qui permet de découpler les influences de la matrice et du renfort, est communément utilisé pour les matériaux composites. Il donne la conductivité transverse  $\lambda_{\perp}$  en fonction de la conductivité des fibres  $\lambda_f$  et de la matrice  $\lambda_m$  :

$$\lambda_{\perp} = \lambda_m \frac{(1 + v_f) \lambda_f + (1 - v_f) \lambda_m}{(1 - v_f) \lambda_f + (1 + v_f) \lambda_m} \quad (2.3)$$

où  $v_f$  est la fraction volumique de fibres.

Connaissant l'avancement de la réaction et les conductivités thermiques des résines crue et cuite, il est possible de trouver au moyen d'une loi des mélanges la conductivité de la matrice en fonction de l'avancement de la réaction :

$$\lambda_m(\alpha, T) = (1 - \alpha) \lambda_m(0, T) + \alpha \lambda_m(1, T) \quad (2.4)$$

L'équation (2.3) est alors utilisée pour obtenir l'expression de la conductivité transverse du composite en fonction de la température et de l'avancement de la réaction :

$$\lambda_{\perp}(\alpha, T) = \lambda_m(\alpha, T) \cdot \frac{(1 + v_f) \lambda_f(T) + (1 - v_f) \lambda_m(\alpha, T)}{(1 - v_f) \lambda_f(T) + (1 + v_f) \lambda_m(\alpha, T)} \quad (2.5)$$

En mesurant les conductivités crue et cuite du composite, on obtient ainsi une relation entre les conductivités crue et cuite de la résine seule et des données connues

(la conductivité des fibres est connue). La conductivité de la résine crue est donnée par l'équation ci-dessous :

$$\lambda_{\perp}(0,T) = \lambda_m(0,T) \cdot \frac{(1+v_f)\lambda_f(T) + (1-v_f)\lambda_m(0,T)}{(1-v_f)\lambda_f(T) + (1+v_f)\lambda_m(0,T)} \quad (2.6)$$

La conductivité thermique de la résine crue  $\lambda_m(0,T)$  est alors solution d'une équation du second degré d'inconnue  $X$ :

$$(1-v_f)X^2 + (1+v_f)[\lambda_f(T) - \lambda_{\perp}(0,T)]X - (1-v_f)\lambda_f(T)\lambda_{\perp}(0,T) = 0 \quad (2.7)$$

Si les deux valeurs qui sont solutions de cette équation ne sont pas suffisamment distinctes, il peut être nécessaire de réaliser une seconde expérience avec un taux de fibres différent. On obtient de la même manière la conductivité thermique de la résine cuite  $\lambda_m(1,T)$ . Ceci permet de déterminer grâce à la relation (2.4) la conductivité thermique de la résine en fonction du degré d'avancement de la réaction et de la température. On applique enfin la relation (2.5) et l'on obtient la conductivité thermique transverse du composite.

### 2.2.2 Validation du programme pour la méthode inverse

La Figure 2.4 montre un des essais effectués pour une vitesse de chauffage de 5°C/min afin de valider le programme développé pour l'identification à l'aide de la méthode inverse. La distance entre les thermocouples utilisés comme conditions limites est de 20mm. L'identification est faite sur un unique thermocouple situé au centre du matériau (position 10mm). La fonction représentée est celle que le code doit identifier comme étant la conductivité thermique du matériau. Plusieurs tests ont

été menés informatiquement avec des données sans source d'erreur additionnelle (les données sont exactement celles calculées en résolvant le problème direct), puis les erreurs suivantes ont été introduites par calcul :

- bruit de  $\pm 0.7\text{K}$  sur la température
- erreur de  $\pm 0.2\text{mm}$  sur la position des thermocouples
- erreur de  $\pm 4\%$  sur la chaleur spécifique.

Avec toutes les sources d'erreur cumulées, l'écart maximal entre les valeurs calculées et les valeurs exactes n'excèdent pas  $\pm 4\%$ . Le code peut donc être considéré comme valide.

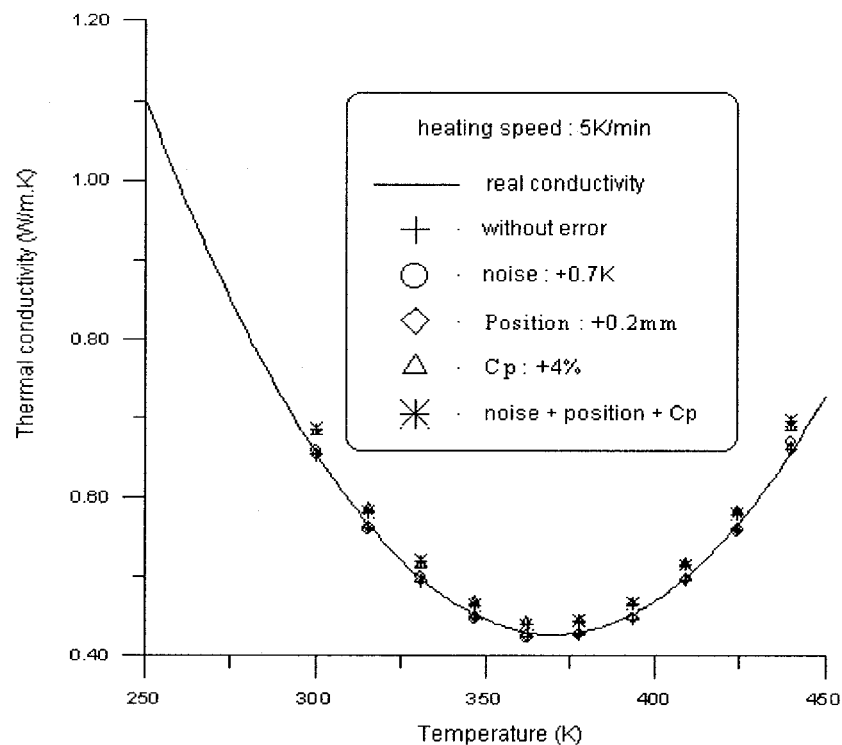


Figure 2.4 : Validation du code d'identification de conductivité (tiré de Sobotka [18]).

### **CHAPITRE 3**

## **CONCEPTION ET VALIDATION NUMÉRIQUE D'UN MOULE POUR MESURER LA CONDUCTIVITÉ THERMIQUE TRANSVERSE**

Le chapitre précédent a présenté, la méthode de mesure de la conductivité thermique transverse. L'hypothèse la plus importante qui doit être satisfaite pour permettre ce genre de mesure concerne l'unidirectionnalité des transferts de chaleur à travers l'épaisseur de la cavité. Il est donc capital que le moule conçu pour cette mesure respecte cette condition. Des simulations sont donc menées pour déterminer les dimensions du moule ainsi que l'emplacement de certains composants (capteurs). Notons que des contraintes géométriques doivent également être prises en compte : (1) les échantillons sont des plaques planes; (2) l'épaisseur des échantillons doit être suffisante pour permettre de positionner au moins trois thermocouples selon la direction transverse du composite; (3) enfin, les dimensions planes des échantillons doivent être plus grandes que l'épaisseur afin d'assurer justement l'établissement d'un gradient de température transverse significatif au centre de la plaque.

Une première étude bidimensionnelle est conduite afin de déterminer les dimensions du moule pour lesquelles le gradient de température dans la cavité est bien vertical, tout au moins dans la zone centrale lors d'un chauffage uniforme des faces horizontales inférieure et supérieure. L'influence des bords, point d'injection, évent et capteurs insérés dans le moule est étudiée avec le module d'analyse thermique transitoire du logiciel LCMFlot. Les simulations feront l'objet d'une étude visant à définir le maillage convergent le moins lourd possible, afin de réduire le temps de calcul avec LCMFlot. Les pas de temps sont aussi examinés. Ces simulations bidimensionnelles ont pour but de modifier la géométrie du moule en fonction des matériaux utilisés afin de vérifier en détail que la conception finale du moule convient pour les expériences destinées à la mesure de conductivité transverse. Le maillage bidimensionnel



correspondant à la géométrie finalement retenue pour le moule sera ensuite utilisé pour valider cette conception en réalisant plusieurs expériences numériques pour évaluer la conductivité avec la méthode inverse à partir d'une observation de la température calculée en trois points à travers l'épaisseur et au centre de l'échantillon. Enfin, une analyse tridimensionnelle permettant de coupler les perturbations thermiques dues à la géométrie du moule viendra confirmer les résultats obtenus par l'analyse bidimensionnelle.

Les différents logiciels utilisés sont GMSH et I-DEAS pour réaliser les maillages bidimensionnels et tridimensionnels ; ces maillages sont ensuite utilisés dans LCMFlot avec lequel les simulations thermiques sont réalisées.

### **3.1 Dimensionnement initial du moule**

Jauffres [37] avait déjà mené des simulations pour déterminer qu'une cavité de 10 x10 cm est suffisante pour négliger les effets thermiques au bord du moule et à la carotte d'injection, si celle-ci est située dans une bande supplémentaire de 2 cm de largeur. Devant l'intérêt que représente pour d'autres fins l'utilisation d'un capteur de pression dans le moule, une série de simulations a été menée avec LCMFlot afin de déterminer si l'influence de ce capteur risque de perturber les transferts thermiques d'une manière significative dans la cavité et d'altérer ainsi la validité des mesures de conductivité transverse. Ces capteurs de pression ne sont pas utiles pour la détermination de la conductivité thermique, mais représentent un intérêt pour d'autres travaux futurs du laboratoire. Ils constituent donc une contrainte supplémentaire pour laquelle une adaptation du moule doit être apportée.

### 3.1.1 Modèle initial

Le moule initial avec la cavité de la taille calculée par Jauffres [37] est schématisé dans la Figure 3.1. Le coefficient de convection  $h$  autour du moule entre l'air et l'isolant est estimé à  $9 \text{ W/m}^2\text{K}$  (voir annexe II), avec comme température de référence  $300\text{K}$ . Les matériaux possèdent les caractéristiques détaillées dans le Tableau 3.1. Les valeurs concernant l'aluminium et l'acier inoxydable (lequel est le principal matériau composant le capteur de pression) sont issus d'un ouvrage de référence [31]. Les données concernant le matériau composites sont issus de précédents travaux sur la conductivité thermique d'un matériau composite verre/polyester par Sobotka [18]. Le choix du matériau utilisé comme isolant a tout d'abord été fait de manière générique : une valeur de conductivité a été prise majorant celle des isolants communs (laine de verre, fibre de verre, mousses, etc., informations tirées du même ouvrage que précédemment [31]). Les résultats ont été vérifiés ultérieurement après que le choix du matériau ait été arrêté (Firetemp ®).

Tableau 3.1 : Propriétés des matériaux utilisés dans le modèle initial à  $T=300\text{K}$ .

Matériau	Conductivité en $\text{W/m.K}$	$C_p$ en $\text{J/kg.K}$	zone
isolant	0.08	1200	1
composite	0.3	1300	4
acier	15	470	3
aluminium	237	900	2

Le système de chauffage est modélisé par un flux de chaleur uniforme imposé sur les plaques supérieure et inférieure du moule (symbolisé par les flèches sur la Figure 3.1). La forme du flux sera différente, mais reste assez proche de ce modèle. Des simulations plus précises, prenant en compte la configuration exacte du système de chauffage, sont présentées plus loin dans ce chapitre. Le flux uniforme est choisi de

manière à imposer une montée en température d'environ  $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ . Ce flux de  $25000\text{ W/m}^2$  correspond à l'ordre de grandeur de la puissance de chauffage initialement calculée par Jauffres [37] (un tel flux sur deux plaques de  $10 \times 12\text{ cm}$  donne environ 700 Watts de puissance nécessaire). Dans ce modèle, l'influence du capteur est maximisée, car le flux de chaleur n'y est pas appliqué. On suppose en effet que celui-ci est uniquement appliqué sur les surfaces en aluminium (zone 2 sur la Figure 3.1). C'est donc le « pire cas » qui est étudié ici.

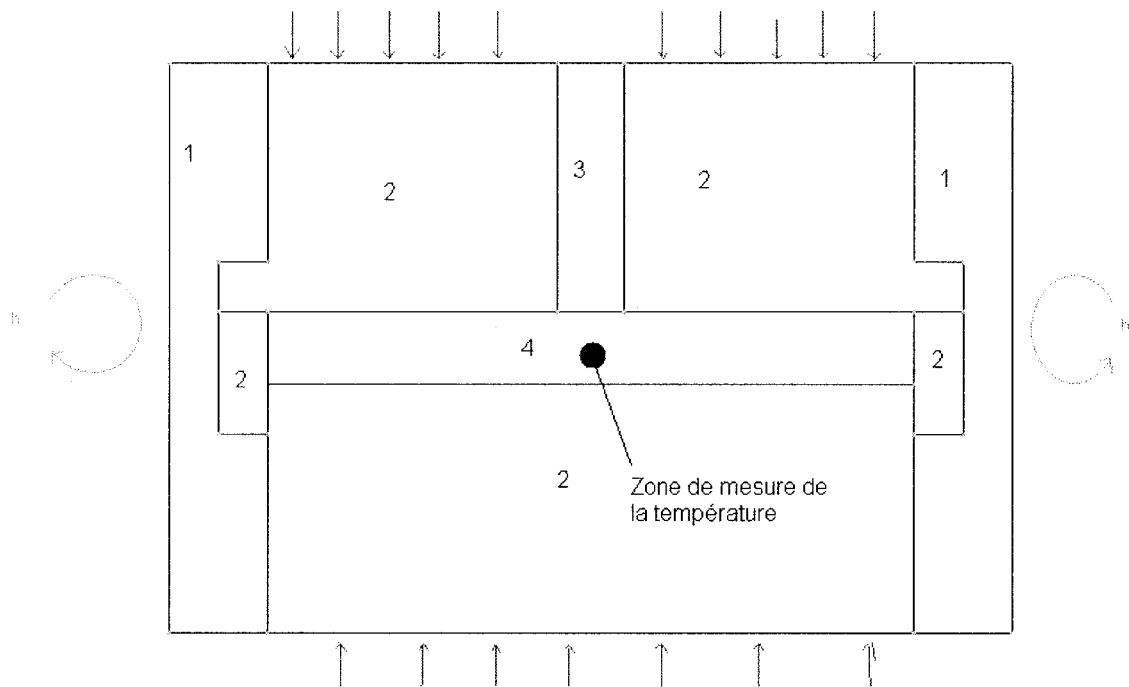


figure 3.1 : schéma en coupe du moule initial.

Le maillage de cette géométrie a été réalisé avec le logiciel GMSH (maillage 1 – annexe I). La température initiale est de  $300\text{ K}$  dans tout le moule, l'analyse thermique est donc transitoire. Les résultats obtenus avec LCMFlot dans la Figure 3.2 pour une telle configuration montrent que la faible conductivité de l'acier du boîtier contenant le capteur de pression modélisé ici comme un tube d'acier) exerce une grande influence

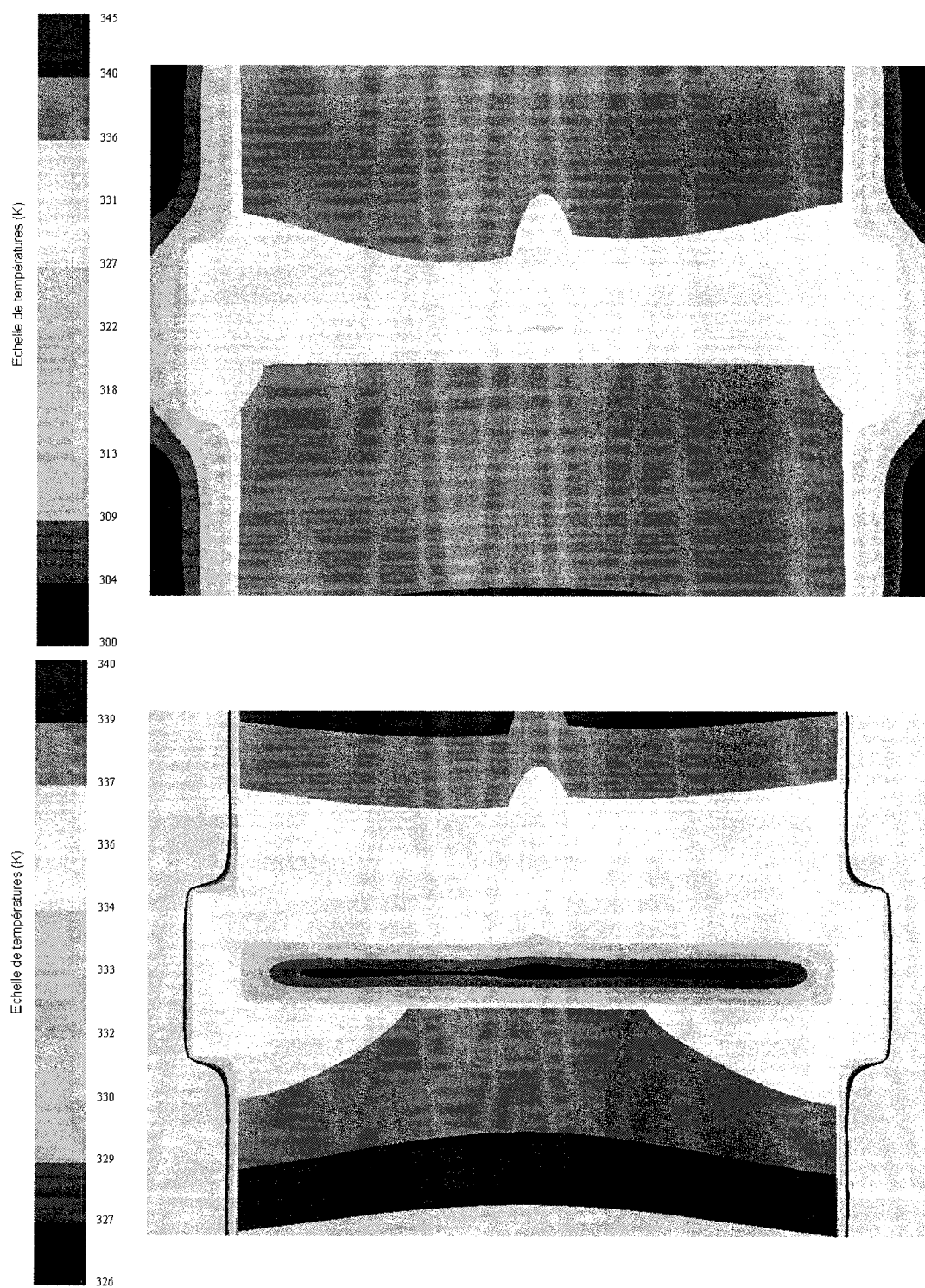


Figure 3.2 : Distribution de température dans le moule initial ( $t=282s$ ), avec deux échelles de température différentes.

non seulement sur la distribution de température dans le moule, mais aussi dans la cavité elle-même. Le milieu de la cavité, où les mesures de température doivent être effectuées pour la méthode inverse, ne présente pas les caractéristiques nécessaires, le capteur ayant créé un puits de chaleur. Il n'est pas possible non plus de déplacer horizontalement le capteur, les transferts de chaleur n'étant pas suffisamment unidirectionnels en dehors du milieu de la cavité pour assurer une précision d'expérimentation satisfaisante. La Figure 3.2 montre la distribution de température au bout de 282 secondes pour deux échelles différentes. Sur la partie supérieure de la figure, l'échelle des températures est plus large et donne un aperçu global, tandis que sur la partie inférieure, l'échelle a été raffinée pour visualiser les isothermes à l'intérieur de la cavité.

### **3.1.2 Agrandissement de la cavité**

L'ajout d'un capteur de pression rend nécessaire l'agrandissement la cavité. Pour les simulations suivantes, les mêmes matériaux et conditions aux limites sont utilisées, seule la géométrie est modifiée. La cavité est agrandie de 27,5 mm et le capteur n'est ainsi plus placé au centre. Les résultats sont présentés sur la Figure 3.3. Le maillage utilisé est le maillage 2 (cf Annexe I). La zone dans laquelle les transferts thermiques sont unidirectionnels a donc augmenté un peu, mais elle n'est pas suffisante si l'on veut effectuer des mesures précises. Il est donc nécessaire de décaler encore plus le capteur de pression vers le bord du moule. Une telle configuration est illustrée dans le schéma de la Figure 3.4. Le maillage 3 de l'Annexe I est utilisé. Les résultats obtenus deviennent alors satisfaisants : les transferts de chaleur sont unidirectionnels dans une partie suffisamment étendue de la cavité, à tout le moins dans le composite et dans son voisinage immédiat, pour effectuer des mesures de conductivité par méthode inverse.

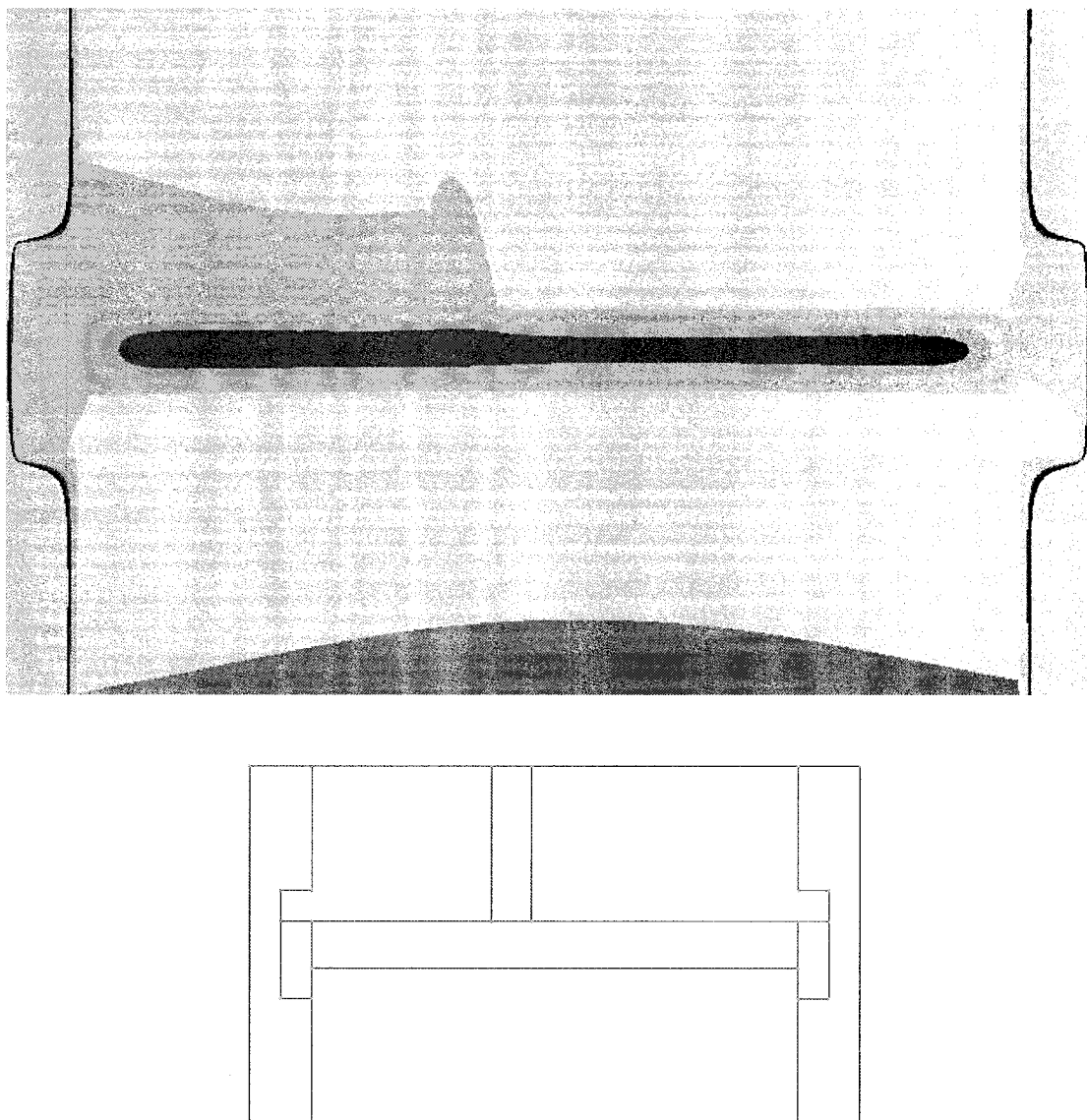


Figure 3.3 : Distribution de température dans le moule agrandi et schéma correspondant.

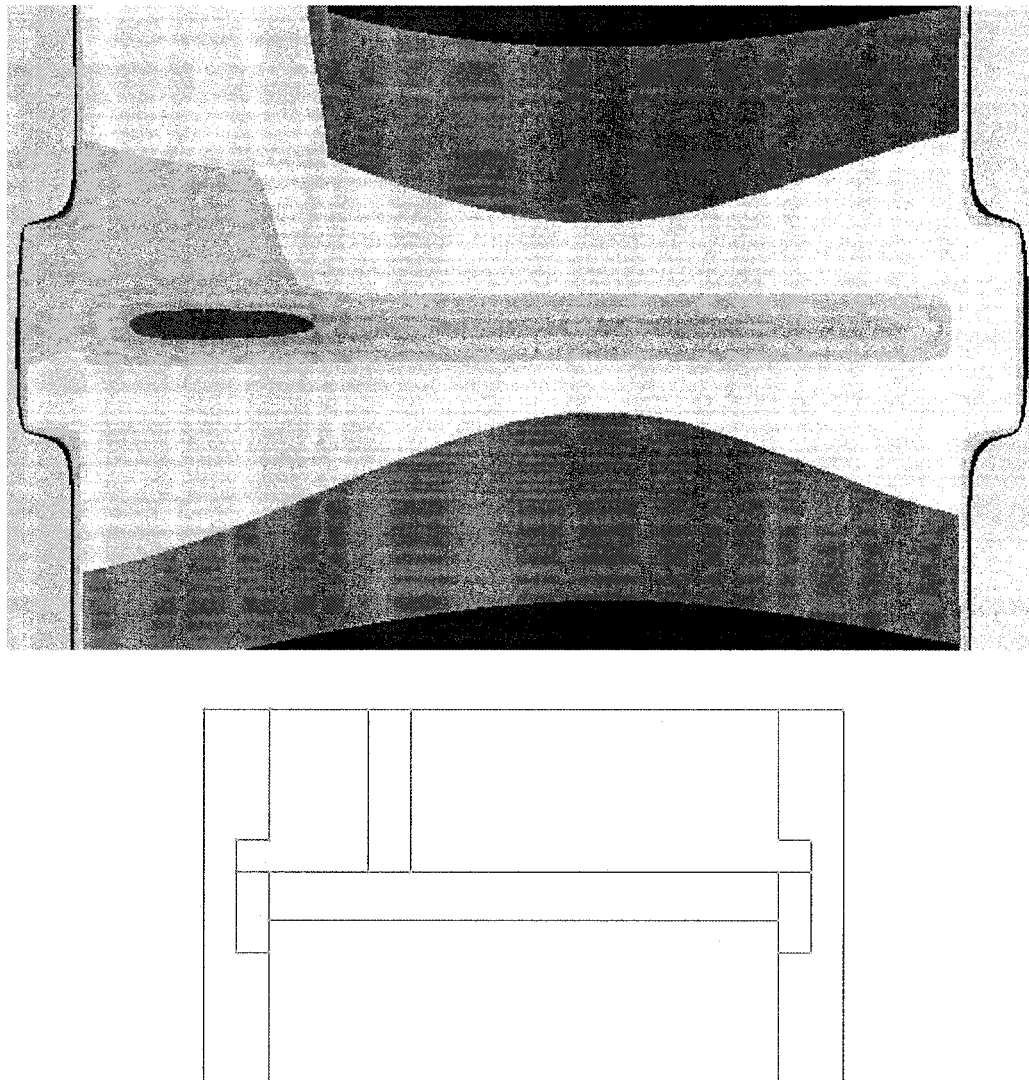


Figure 3.4 : Distribution de température dans le moule agrandi avec capteur de pression décalé et schéma correspondant.

Une telle configuration présente toutefois un inconvénient, car l'influence du capteur de pression sur la distribution de température dans le composite n'est pas négligeable. Si l'on veut évaluer avec précision la conductivité transverse, il faut mesurer la température dans le composite au centre d'une zone d'aire suffisante où le transfert de chaleur est véritablement unidirectionnel à travers l'épaisseur. En général, on considère

qu'un rapport longueur/épaisseur de l'ordre de 10 est suffisant. L'agrandissement du moule au moins dans une direction apparaît donc nécessaire. Il faut en effet disposer d'une zone d'au moins 10 x 10 cm, où le moule sera constitué uniquement d'aluminium afin de préserver une zone d'aire suffisante où le gradient de température sera uniforme et vertical. L'agrandissement du moule dans une direction paraît donc être une bonne solution. Un moule rectangulaire sera considéré.

Notons aussi que l'on ne peut pas décaler beaucoup plus le capteur qu'au-delà de la position indiquée sur le schéma de la Figure 3.4. Il est impossible de le coller contre le bord de la cavité car la mesure de pression doit rester représentative de la pression de compaction du composite sans être perturbée par un effet de bord potentiel sur la paroi. Il faut aussi dans le procédé RTM laisser des espaces suffisants pour le point d'injection d'un côté et pour l'évent de l'autre.

### **3.2 Modélisation du moule final**

L'étude réalisée dans le paragraphe précédent a révélé que l'espace entre un capteur de pression et l'extrémité opposée du moule devait être d'environ 150 mm pour satisfaire parfaitement la condition d'isothermes horizontaux dans le centre du moule. De plus, afin de rendre le moule multifonctionnel et permettre notamment d'effectuer des mesures de perméabilité, la longueur efficace de la cavité a été fixée à 32 cm. Il convient donc de vérifier dans le détail maintenant que cette conception finale convient pour la mesure de conductivité transverse.

#### **3.2.1 Plan du moule et matériaux modélisés**

La Figure 3.5 présente le plan du moule selon la coupe qui est utilisée pour réaliser les simulations en deux dimensions. Le moule est principalement constitué



d'aluminium (parties hachurées). Les capteurs de pression sont en acier inoxydable, dont la conductivité est faible par rapport à celle de l'aluminium (Tableau 3.1). Les propriétés du caoutchouc ont été utilisées pour le joint qui isole le bord de la cavité du moule en aluminium

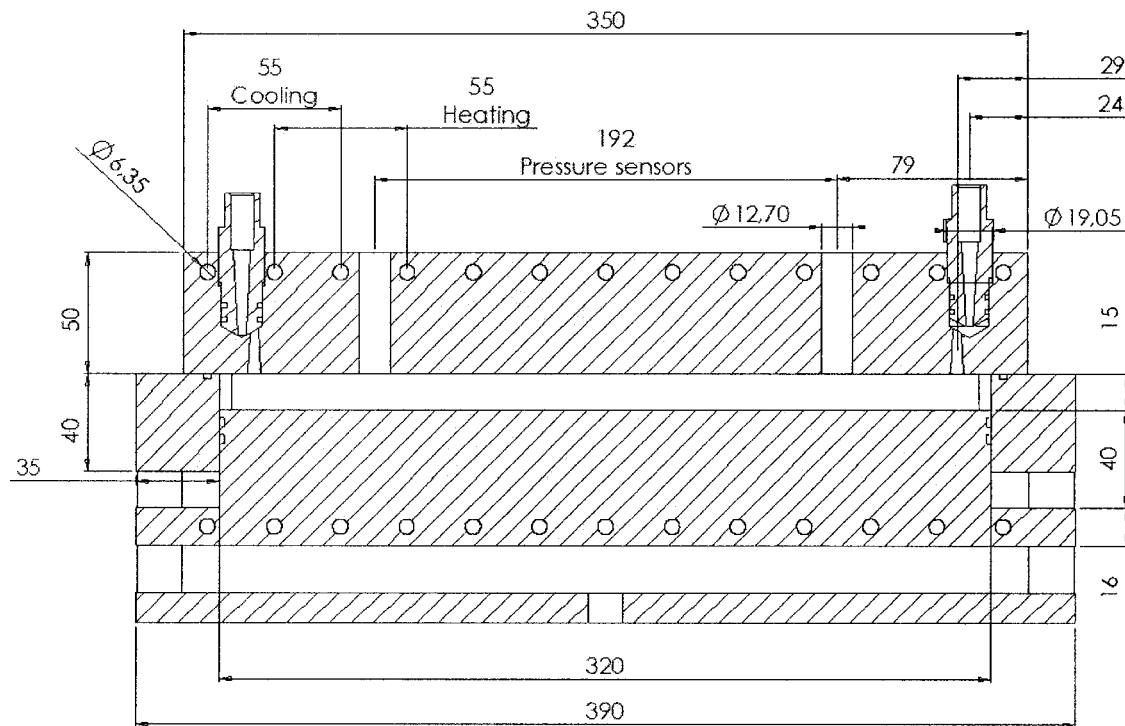


Figure 3.5 : Coupe du moule, configuration « conductivité transverse ».

Les canaux de chauffage possèdent les mêmes propriétés thermiques que les capteurs de pression. Le plupart des simulations se font avec une condition en température imposée sur ces canaux. Il n'est donc pas indispensable de connaître précisément les propriétés thermophysiques des cartouches de chauffage, puisque la température est imposée aux frontières de celles-ci dans les simulations, à l'interface entre le moule et les cartouches chauffantes. On prend donc les propriétés de l'acier, ce qui apporte une approximation suffisante pour ces travaux. Les canaux de refroidissement sont remplis d'air stagnant lors du chauffage. Les propriétés thermiques de l'air à 350K sont donc utilisées [31]. Il est inutile de considérer ici un coefficient de convection, étant donné que l'air est

emprisonné dans une cavité étroite). Dans la suite de ces travaux, l'évent et le port d'injection ne seront pas modélisés. En effet, la zone d'étude est principalement délimitée par les deux capteurs de pression. L'effet perturbateur du port d'injection et de l'évent est donc négligeable dans cette zone, d'autant que leurs propriétés thermophysiques équivalentes sont du même ordre de grandeur que celles de l'aluminium (cf Annexe III). Les propriétés thermiques du composite ont pas été considérées comme indépendantes de la température; elles ont été choisies afin de correspondre à un composite quelconque. L'horizontalité des isothermes est vérifiée pour toute température. La dépendance en température de la conductivité et de la chaleur spécifique du composite n'a évidemment pas d'influence sur les résultats présentés dans cette partie. Notons enfin que les résistances de contact thermiques entre les cartouches et le moule n'ont pas été modélisées, car c'est la répartition de température qui est étudiée ici et non pas le temps de réponse du moule. Ces résistances impliqueraient un petit retard de chauffage mais ne modifieraient pas la répartition du chauffage dans le moule.

Tableau 3.2 : Propriétés thermophysiques des matériaux.

	Densité (kg/m <sup>3</sup> )	Conductivité (W/mK)	Chaleur spécifique (J/Kg.°C)
Aluminium	2700	237	900
Acier	8000	15	470
Caoutchouc	1190	0,16	2000
canaux de refroidissement	0.99	0,03	1000
Matériau composite	1200	0,3	1400

### 3.2.2 Validation du maillage et du pas de temps

Le maillage a été réalisé avec le logiciel GMSH (<http://www.geuz.org/gmsh/>). L'épaisseur de la cavité est modulable. Les résultats présentés ici ont été effectués avec une épaisseur de 20 mm. Des conclusions similaires seraient obtenues avec des épaisseurs différentes (supérieures à 15 mm), mais comme les expériences seront menées avec des épaisseurs de cet ordre, le choix de 20 mm d'entrefer pour la cavité est raisonnable. Les longueurs caractéristiques du maillage sont deux fois plus petites pour les points situés en bordure de la cavité et des canaux de chauffage et de refroidissement qu'au bord du moule. Une analyse thermique bidimensionnelle est effectuée ici dans un plan de coupe central. Ceci correspond évidemment à une perturbation maximale de la distribution de température, donc au cas le plus pessimiste, car ce plan inclut les capteurs de pression.

#### 3.2.2.1 Validation du maillage

On compare ici à la Figure 3.6 les résultats de la température au centre de la cavité obtenus avec le maillage retenu, un maillage deux fois plus fin et un maillage plus grossier. Les longueurs caractéristiques utilisées sont respectivement de 1 mm, 0.6 mm et 0.3 mm (voir Annexe I, maillages 4, 5 et 6). La simulation est effectuée pour une montée en température de 10°C/min (condition de température imposée aux canaux de chauffage). Des senseurs de température virtuels sont placés dans le composite et dans le moule lors de ces simulations. On obtient le graphique de la Figure 3.6 pour un des senseurs situé au centre de la cavité (les autres donnent les mêmes résultats).

On remarque une divergence du résultat pour le maillage de longueur caractéristique 1 mm. En revanche, sur la Figure 3.6, les deux autres longueurs caractéristiques donnent des résultats identiques. Pour limiter le temps de calcul, il sera

donc suffisant d'utiliser le maillage de longueur caractéristique 0.6 mm (5766 éléments). D'autres simulations ont été menées afin de confirmer ce résultat avec les maillages 7 et 8, dont la précision est intermédiaire entre les maillages 5 et 6.

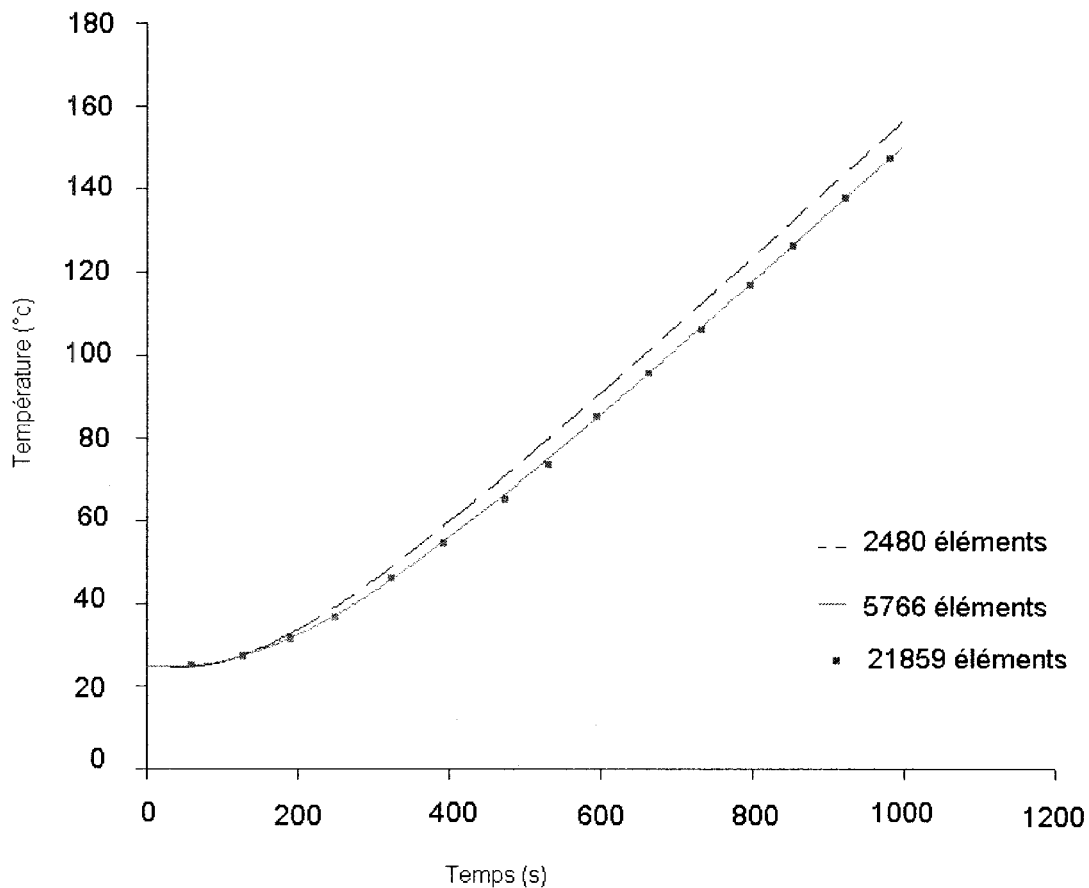


Figure 3.6 : Influence de la précision du maillage.

### 3.2.2.2 Validation du pas de temps

Le même type de comparaison a été effectué à la Figure 3.7, mais cette fois pour des pas de temps de 3 secondes, 1 seconde et 7 secondes. On constate une légère divergence pour le pas de temps le plus grand. Les deux autres présentent des résultats identiques.

On utilisera donc finalement le maillage avec 5766 éléments présenté auparavant avec un pas de temps de trois secondes pour l'analyse thermique transitoire.

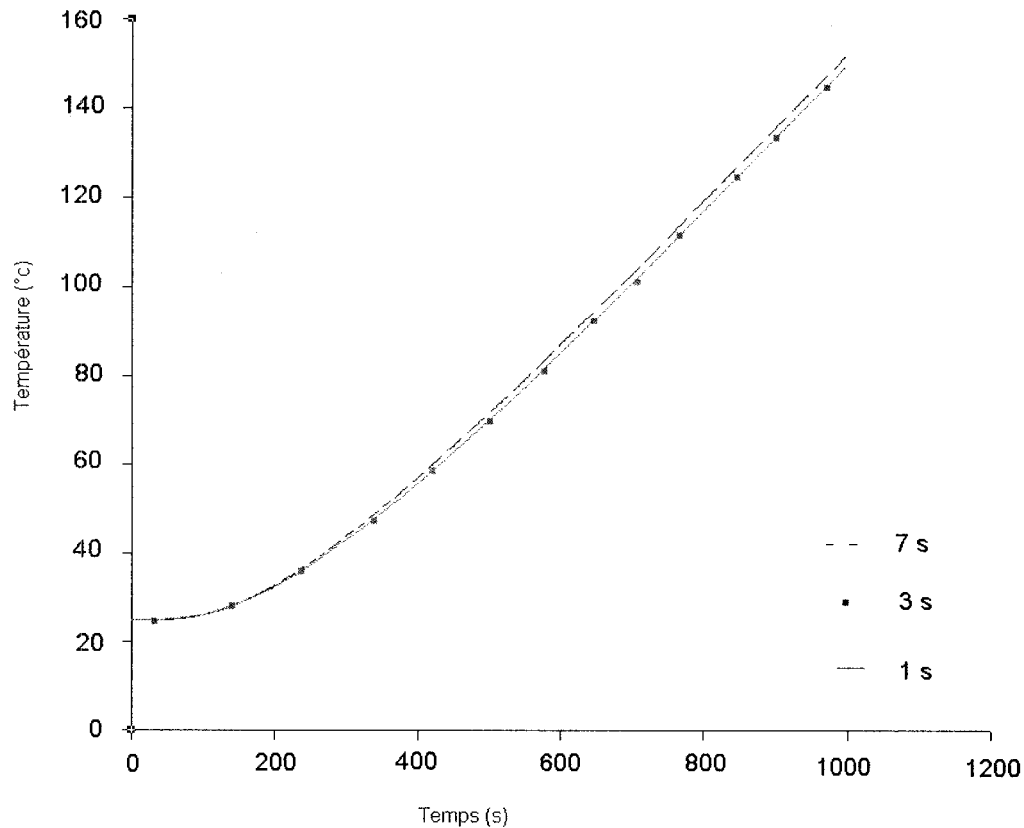


Figure 3.7 : Influence du pas de temps.

### 3.3 Étude de la distribution de Température

Les simulations de chauffage présentées ont été réalisées avec une condition limite sur les canaux chauffants de montée en température de 25°C à 195°C à une vitesse de 10°C/min. Quelques simulations ont été menées à d'autres vitesses (5°C/min et 15°C/min), qui confirment les résultats obtenus et qui ne seront donc pas présentées ici. L'épaisseur de la cavité est toujours de 20 mm. Deux conditions doivent être vérifiées pour assurer la fiabilité de la procédure de mesure de la conductivité thermique transverse : les transferts de chaleur doivent être verticaux (ce qui se traduit par des

isothermes horizontaux) dans la zone de mesure. On doit aussi créer un gradient de température assez important à travers l'épaisseur pour que l'exploitation des mesures conduise à des résultats significatifs.

### **3.3.1 Transferts de chaleur unidirectionnels verticaux**

La Figure 3.8 montre la distribution de température au bout de 941 secondes. La distribution reste identique, à l'échelle de température près, lors de la montée en température. On constate l'effet perturbateur des capteurs de pression, qui provoquent un retard de la montée en température sur les bords par rapport au milieu de la cavité. La procédure de mesure de la conductivité transverse demande de satisfaire les conditions énoncées précédemment dans la zone de mesure. On constate déjà sur la Figure 3.8 que la partie centrale de la cavité semble répondre aux exigences de la méthode.

La Figure 3.9 présente un agrandissement de la même distribution de température avec une échelle de température raffinée pour présenter un maximum d'isothermes. La figure est centrée sur la partie centrale de la cavité située entre les deux capteurs de pression. La largeur de la partie du moule qui apparaît sur cette figure est d'environ 15 cm. On constate que, même si les isothermes ne sont pas planes dans tout le volume du moule, ils sont bien horizontaux à travers l'épaisseur du composite dont on veut mesurer la conductivité.

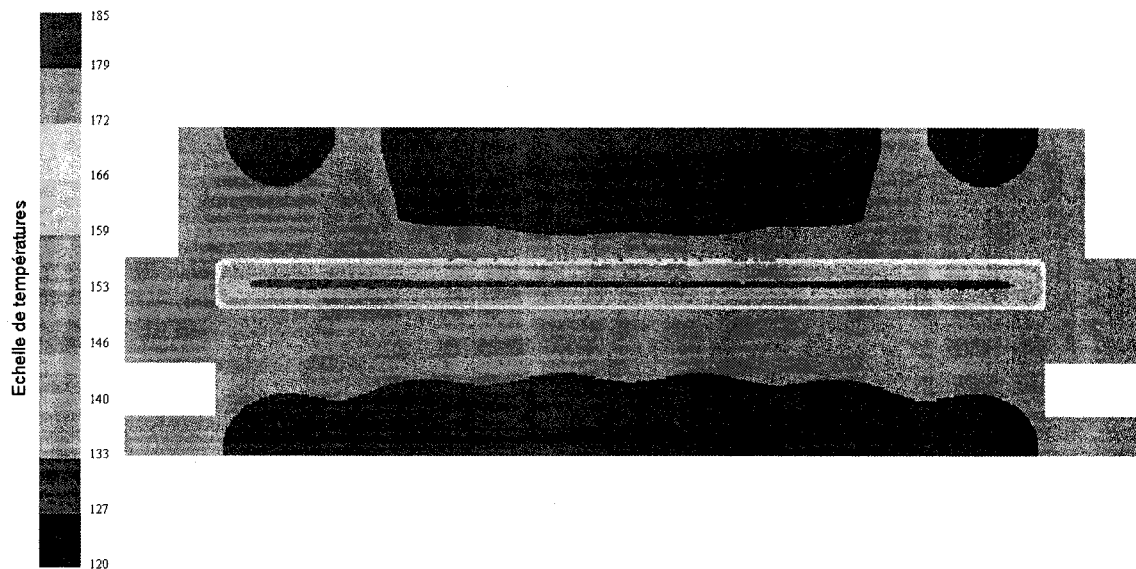


Figure 3.8 : Distribution de température durant la phase de chauffage au temps  $t=941$  s.

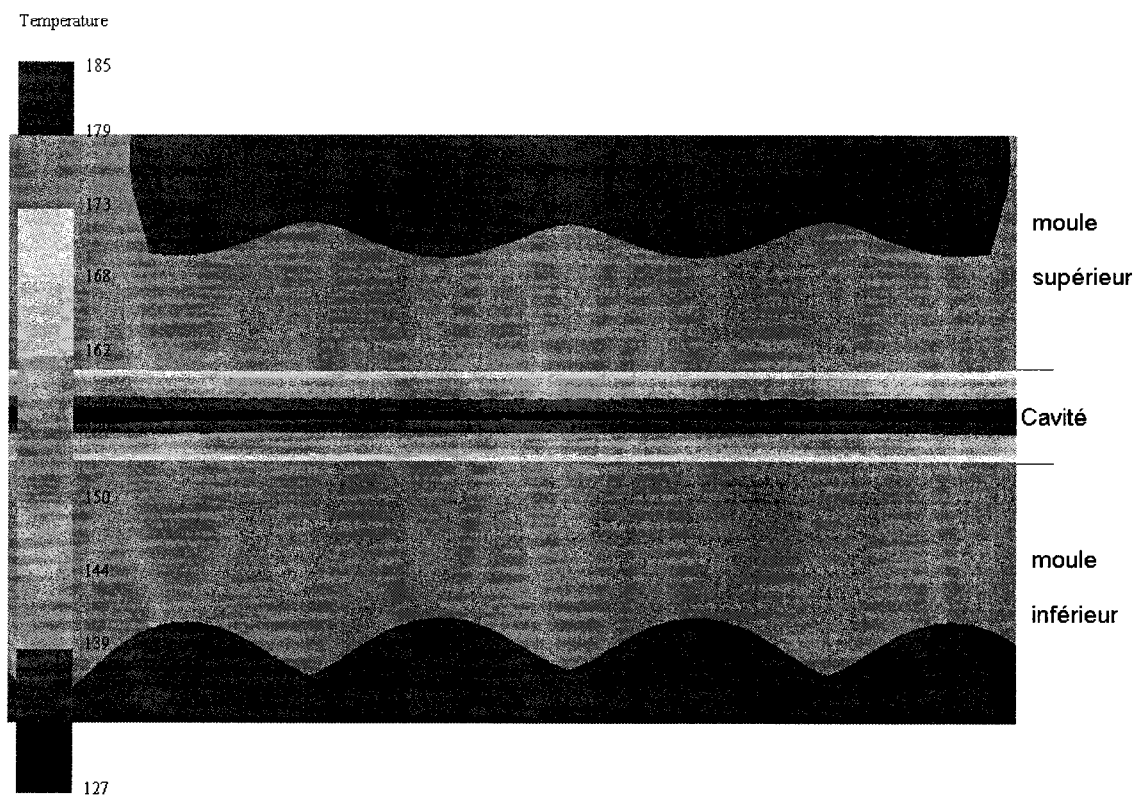


Figure 3.9 : Vue de détail sur la distribution de température au centre de la pièce au temps  $t= 941$  s.

Visuellement, les isothermes sont donc planes. Il est toutefois important de vérifier quantitativement l'uniformité du champ transitoire de température. Pour cela, deux séries de cinq senseurs virtuels de température ont été placées verticalement à travers l'épaisseur du composite pendant les simulations numériques à deux abscisses différentes : une série de senseurs est située au centre de la cavité, et l'autre est décalée de 20 mm. La Figure 3.10 illustre les différences de température entre les senseurs situés à la même profondeur dans le composite. Sur la figure 3.11, cette différence est représentée en pourcentage. Les senseurs de chaque série sont espacés régulièrement dans l'épaisseur du composite.

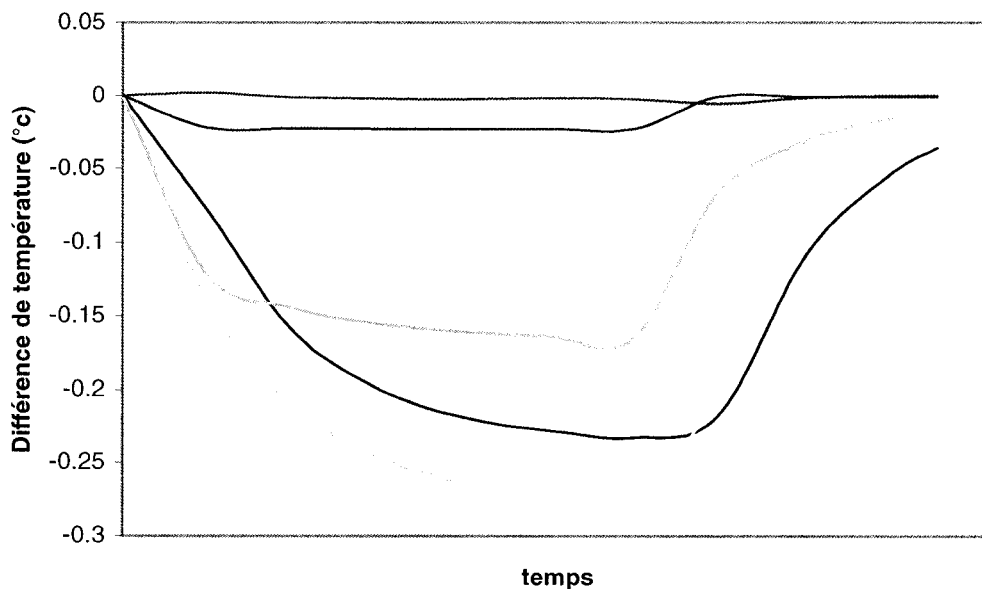


Figure 3.10 : Différence de température entre deux séries de senseurs écartées de 2 cm.

La conclusion de ces courbes est que l'on a toujours moins de 0.5% de différence entre deux senseurs de température écartés horizontalement de 20 mm dans la zone centrale du moule, ce qui nous assure que l'on a bien des transferts thermiques unidirectionnels dans cette partie, où l'on effectuera donc les mesures. On obtient évidemment des résultats similaires si l'on étudie la différence au niveau du gradient de température entre deux positions dans la cavité situées sur un même plan horizontal.



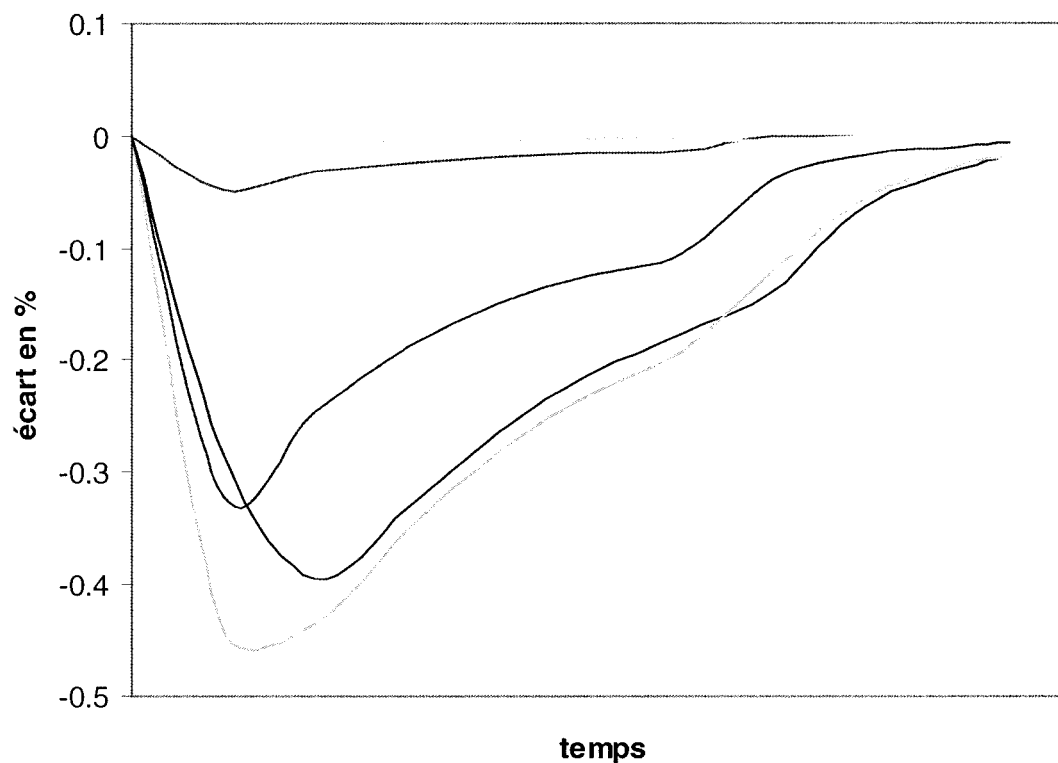


Figure 3.11 : Pourcentage d'écart en température entre ces mêmes séries de senseurs.

### 3.3.2 Gradient de température

Cette étude ayant déjà été menée, il est ici simplement vérifié que la configuration répond bien aux exigences concernant le gradient de température. La Figure 3.12 montre le profil de température à travers l'épaisseur du moule à différents temps (l'axe vertical Oz part du centre du composite et s'étend jusqu'au bord supérieur du moule). On a ici une période de chauffage puis de stabilisation à 195°C.

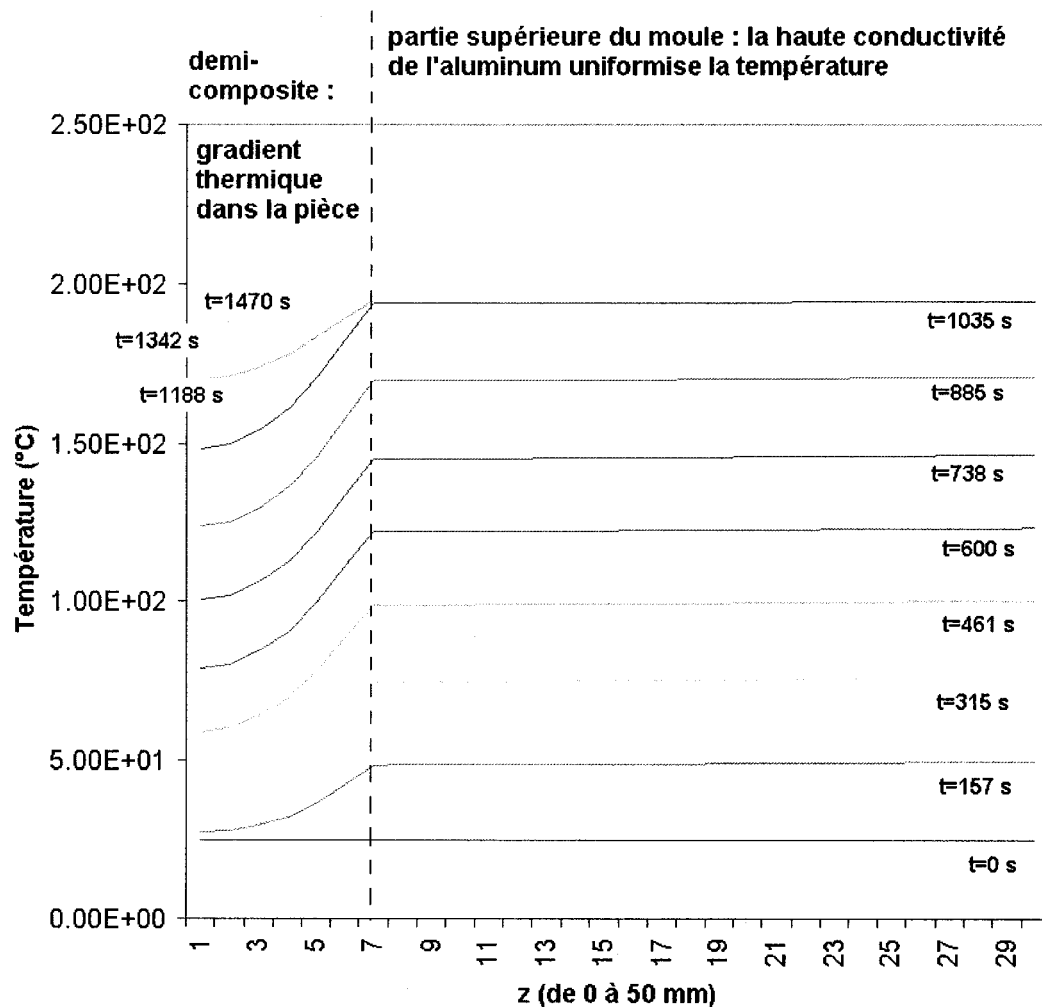


Figure 3.12 : Profil de température à travers l'épaisseur du moule et du composite.

Les Figures 3.12 et 3.13 viennent confirmer que le gradient de température est suffisamment important pour effectuer une mesure de conductivité transverse. On veillera toutefois à utiliser des échantillons à caractériser d'une épaisseur supérieure ou égale à 15 mm, afin de minimiser l'erreur relative sur la position des thermocouples. Le moule permet de travailler avec une cavité de 30 mm. Ceci permet ainsi d'assurer une bonne qualité aux résultats de mesure. Les résultats présentés dans ce rapport sont issus d'une simulation réalisée pour une pièce d'épaisseur 20 mm.

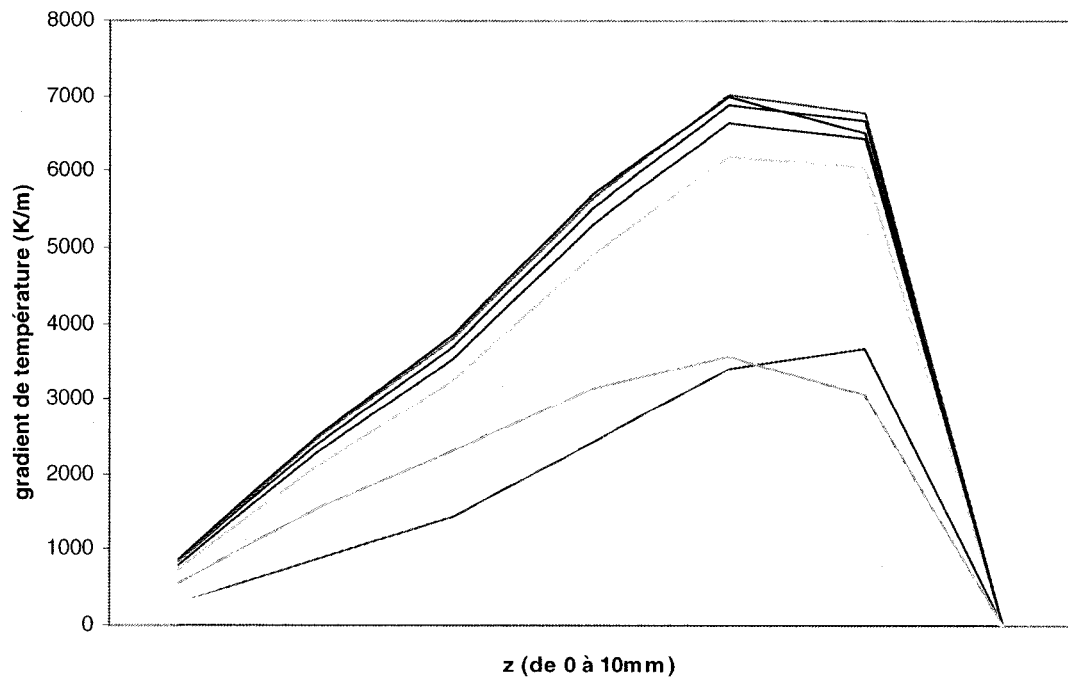


Figure 3.13 : Gradient de température dans l'épaisseur du composite (temps identiques à la Figure 3.12).

### 3.4 Validation de la conception du moule par la méthode inverse

#### 3.4.1 Identification de quelques conductivités thermiques

La conception du moule est finalement validée en effectuant des expériences virtuelles avec le logiciel LCMFlot et en analysant les données avec la méthode inverse. Des senseurs de température sont placés dans l'épaisseur du composite, simulant des thermocouples dont on devra mesurer les positions. La conductivité calculée à l'aide des relevés de températures par la méthode inverse est comparée avec la conductivité du matériau lors de la simulation. On obtient ainsi une estimation des erreurs résultant de la conception même du moule. La Figure 3.14 présente trois comparaisons pour une conductivité proche d'une valeur typique d'un composite verre-polyester (0.4 W/mK) et

deux autres valeurs plus éloignées (0.1 et 20 W/mK). Les résultats sont satisfaisants. Chacun des points sur ces courbes est obtenu avec le logiciel de caractérisation par méthode inverse, dans lequel on précise une série de température auxquelles la conductivité thermique doit être.

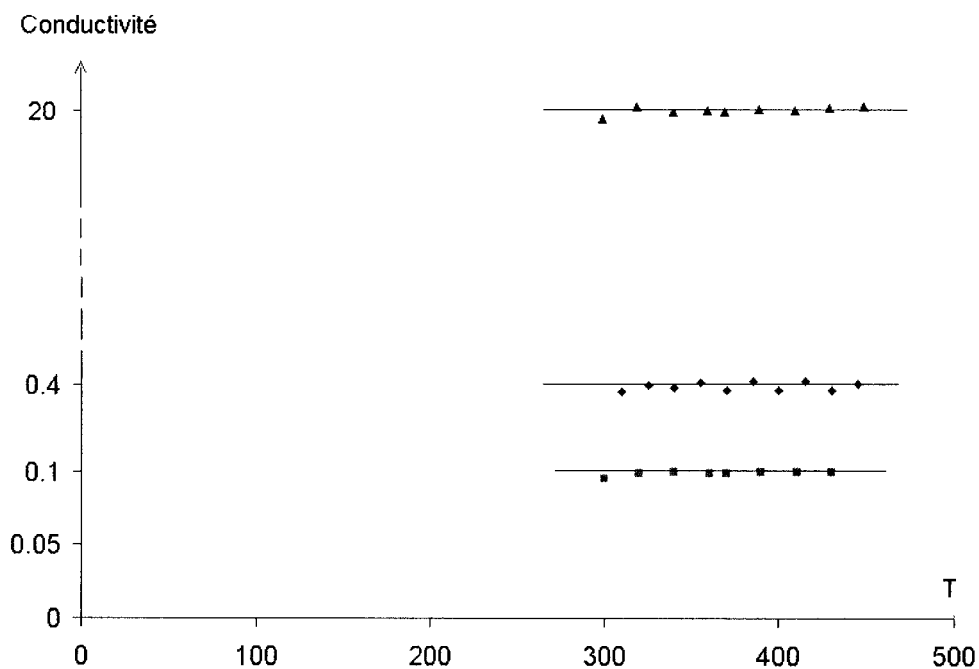


Figure 3.14 : Comparaison des conductivités thermiques réelles et identifiées.

Les mêmes résultats présentés sous forme de pourcentage sont reportés sur la Figure 3.15. On peut constater que globalement l'erreur ne dépasse pas 2%, sauf dans un cas particulier qui correspond à 300K. L'identification est moins précise à cette température, car c'est la température initiale du composite et du moule. En effet, le gradient de température est nul lorsque la température est de 300K au niveau du thermocouple d'identification. En comparant ces résultats avec la précision du logiciel de méthode inverse, qui est du même ordre de grandeur, on peut en déduire que le moule est

suffisamment précis pour mesurer la conductivité transverse par une méthode de métrologie thermique inverse.

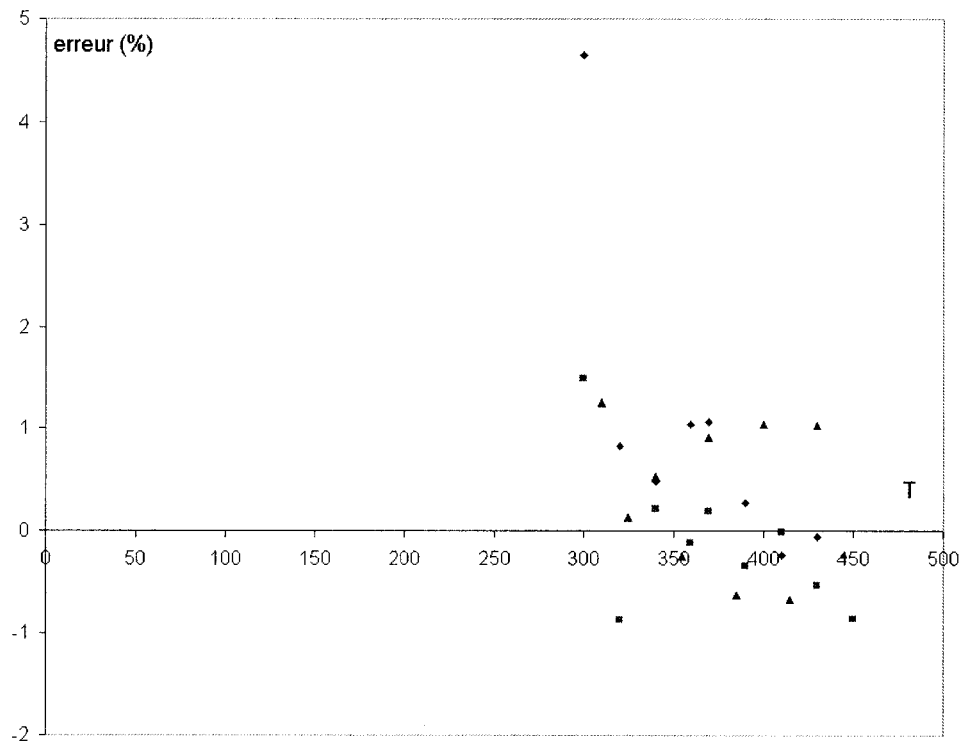


Figure 3.15 : Erreur en pourcentage sur les conductivités mesurées virtuellement.

### 3.4.2 Influence de l'épaisseur de la cavité

Il a donc été déterminé qu'avec une épaisseur de cavité de 20 mm, les résultats obtenus sont très bons. Afin de minimiser les difficultés d'expérimentation et de réduire possiblement l'épaisseur du composite requise pour mesurer la conductivité transverse, des simulations avec le logiciel LCMFlot ont été effectuées pour diverses épaisseurs de cavité. Pour chaque simulation, des senseurs virtuels ont été placés à travers l'épaisseur du composite. Les températures calculées dans le temps ont ensuite été utilisées avec le programme d'identification de la conductivité thermique. Ces simulations ont été menées avec la toute dernière conception du moule, qui comprend des senseurs de pression dans

la partie supérieure du moule, mais aussi dans la partie inférieure (voir section 3.5, simulations tridimensionnelles). On constate sur la Figure 3.16 que l'erreur peut devenir importante (supérieure à 5%) pour des épaisseurs de cavité inférieures à 10 mm. On effectuera donc toujours les mesures avec cette épaisseur minimale, et de préférence pour des cavités d'au moins 15 mm.

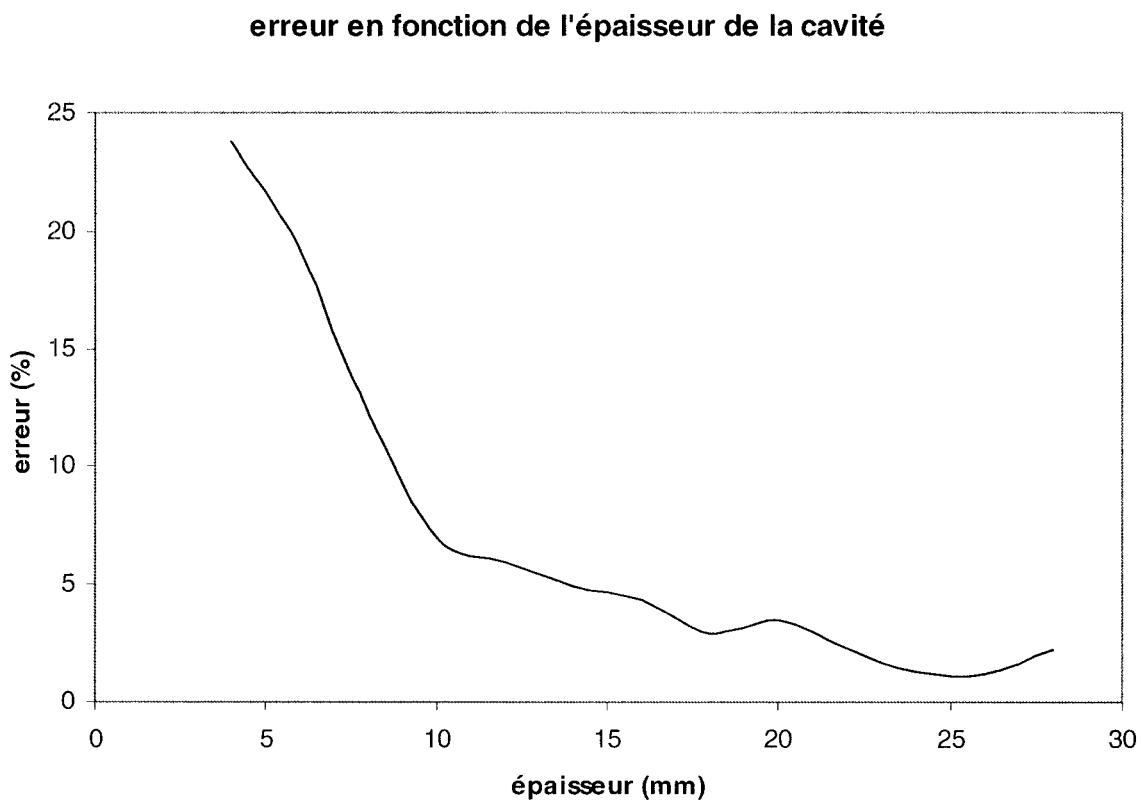


Figure 3.16 : Erreur relative moyenne sur la mesure de conductivité en fonction de l'épaisseur de la cavité.

### 3.5 Simulations tridimensionnelles

Les simulations bidimensionnelles ont permis de montrer que la conception du moule permet de réaliser des mesures de conductivité thermique précises, ainsi que de déterminer certaines conditions expérimentales à respecter pour assurer la fiabilité des mesures (épaisseur de cavité, temps d'acquisition). Des simulations tridimensionnelles, beaucoup plus lourdes, ont été réalisées pour confirmer ces résultats bidimensionnels. Cela a permis de vérifier que deux capteurs de pression supplémentaires dans le plateau inférieur du moule ne perturberaient pas plus le système ainsi que de simuler le couplage entre les différentes perturbations : perturbations thermiques dues aux capteurs de pression, pertes par convection externe, largeur de cavité de 110 mm seulement.

Les résultats présentés ont été obtenus avec une cavité de 15 mm. Les maillages utilisés sont visibles à l'Annexe I (maillage 16). Les résultats obtenus confirment les conclusions tirées jusqu'ici. Les Figures 3.18 et 3.19 montrent la distribution de température dans des coupes en largeur et en longueur du moule et passant par son centre pour deux échelles de température. On constate que les profils des isothermes sont semblables à ceux trouvés lors des simulations bidimensionnelles. La Figure 3.20 montre la distribution de température à l'interface entre le composite et le plateau inférieur du moule. On peut ainsi constater que la zone située entre les deux capteurs de pression est chauffée uniformément. Enfin, la Figure 3.17 montre que l'erreur sur l'identification de la conductivité thermique est moindre que celle obtenues avec les simulations bidimensionnelles (de l'ordre de 1% sans erreur sur le positionnement des thermocouples). Cela est dû notamment aux éléments finis utilisés (ici des éléments parallélépipédiques), qui permettent avec LCMFlot de placer les senseurs virtuels exactement sur des nœuds et d'avoir ainsi une lecture exacte de la température calculée à une position du moule.

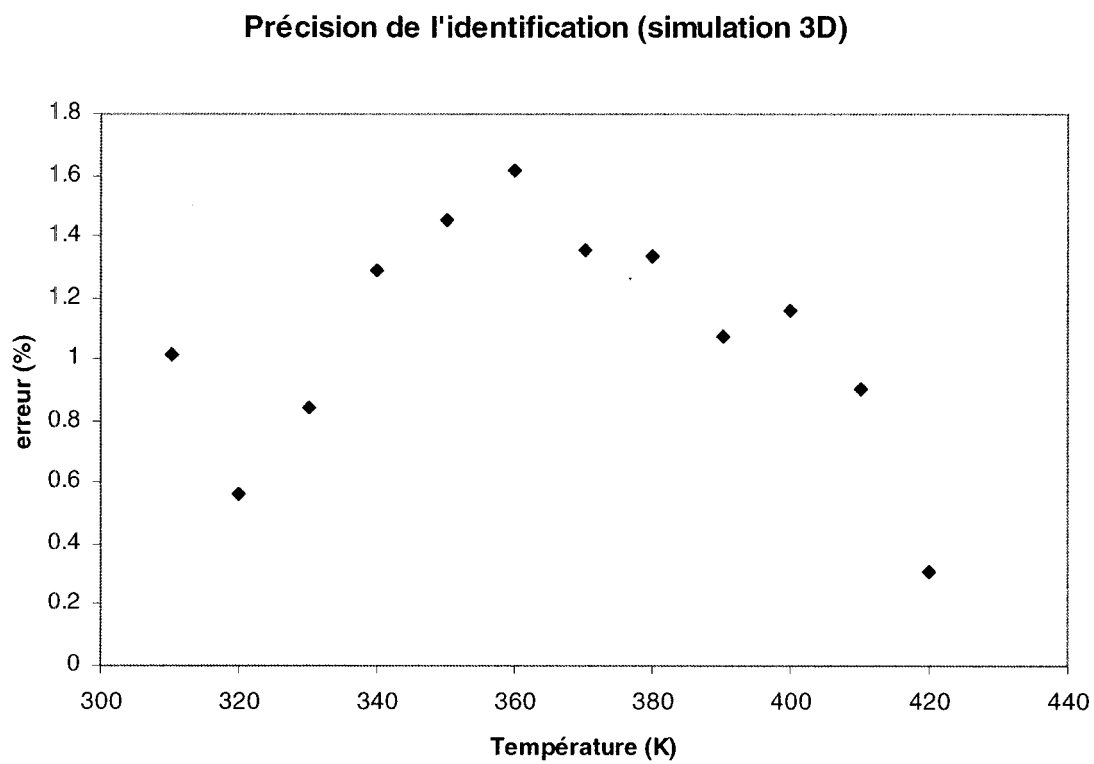
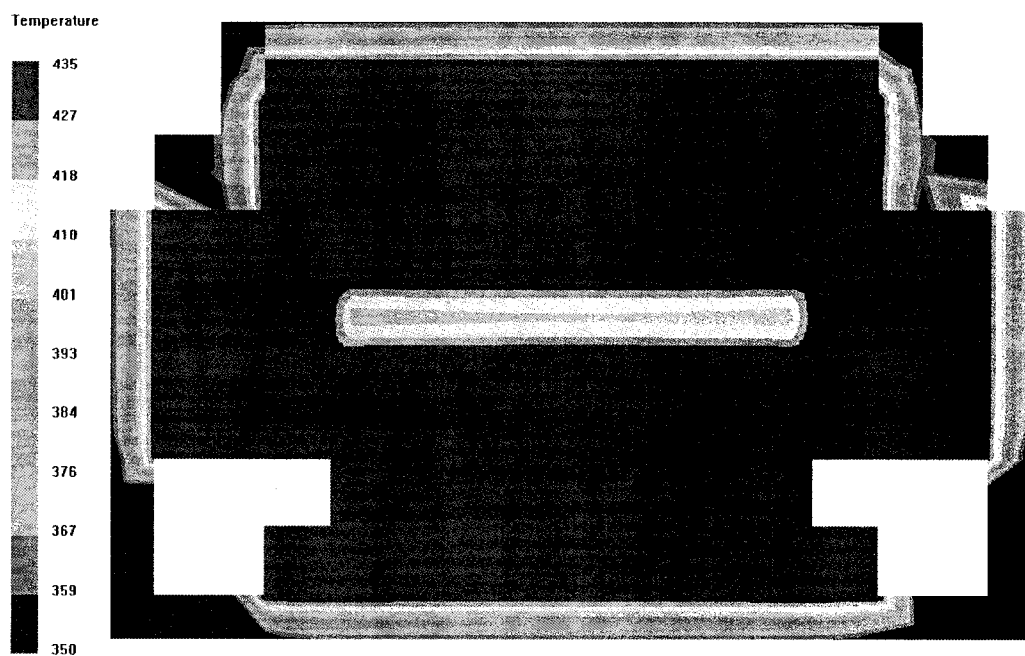
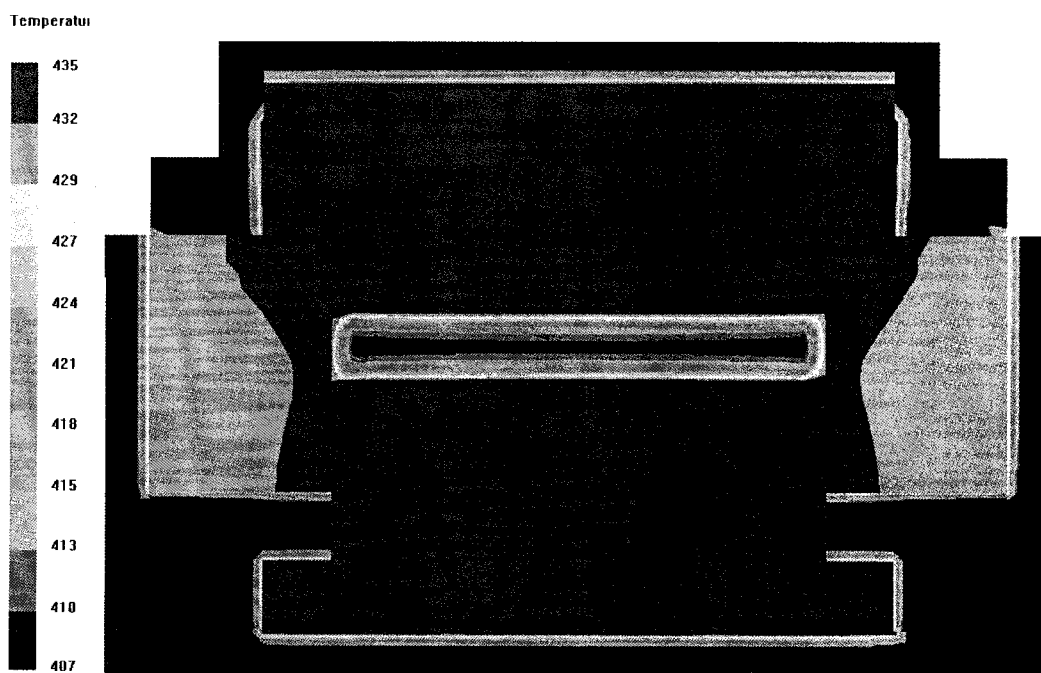


Figure 3.17 : Erreur relative sur l'identification de la conductivité (simulation 3D).





Time : 842 s.



Time : 842 s.

Figure 3.18 : Distribution de température : en haut, vue en coupe (en largeur); en bas, la même vue avec une échelle de température raffinée.

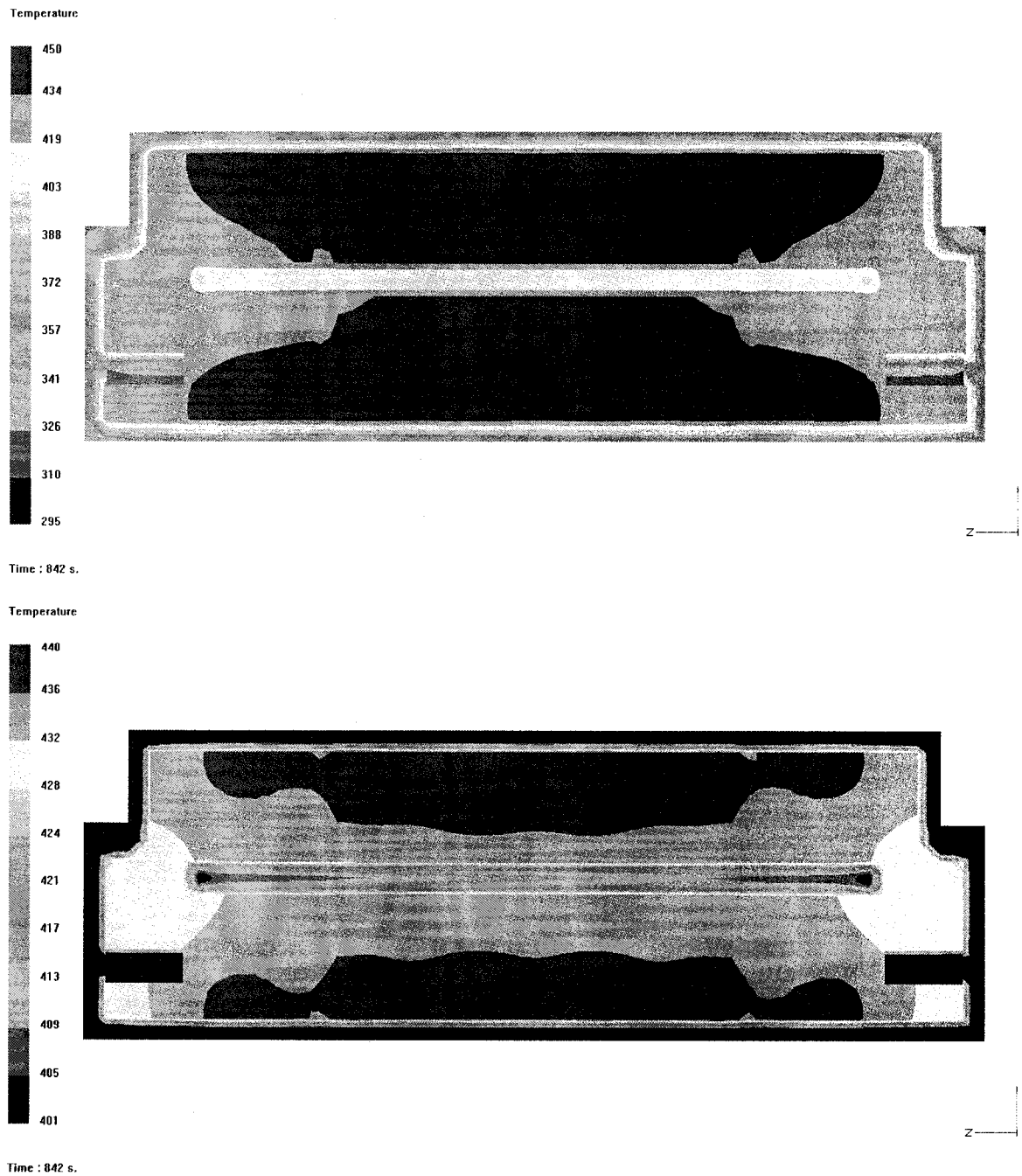


Figure 3.19 : Distribution de température: en haut, vue en coupe (en longueur); en bas, la même vue avec une échelle de température raffinée.

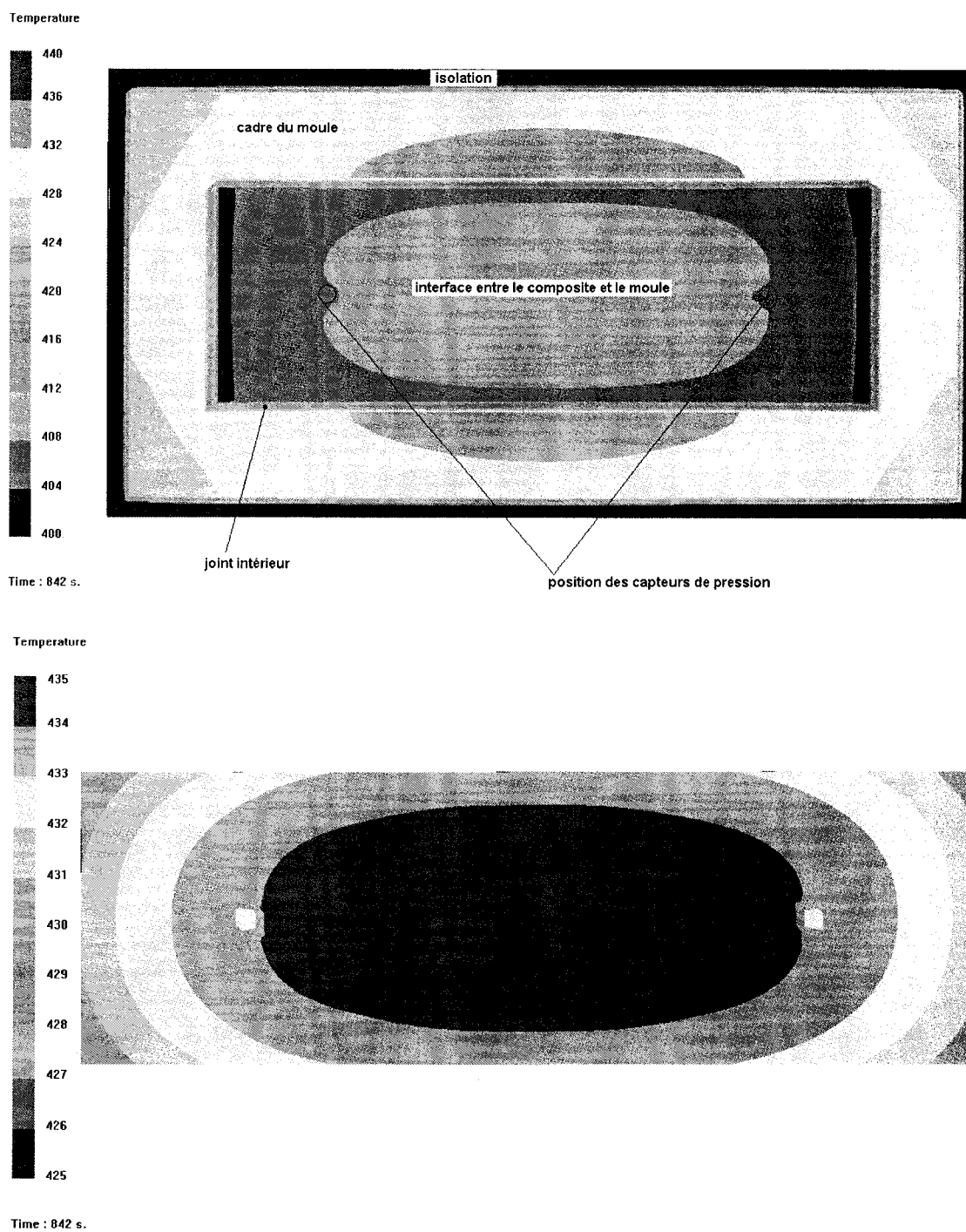


Figure 3.20 : Distribution de température à l'interface entre le composite et le plateau du moule; en haut la coupe du moule complet, en bas une coupe de l'interface seule avec une échelle de température raffinée.

### 3.6 Conclusion

Les simulations de dimensionnement du moule de conductivité transverse ont conduit à considérer une cavité rectangulaire de 10 cm de largeur et agrandie jusqu'à une longueur de 32 cm afin d'incorporer deux capteurs de pression de manière symétrique sur les plateaux inférieur et supérieur du moule. Ces quatre capteurs de pression qui seront disposés près du point d'injection et de l'évent et de conférer ainsi au moule des usages multiples.

Les simulations avec LCMFlot ont révélé que dans cette configuration, les conditions sont très bonnes pour procéder à des expériences afin de mesurer la conductivité thermique transverse d'un matériau composite. Des simulations incorporant les données nouvelles, comme la nature de l'isolant, et finalement des simulations tridimensionnelles permettant de coupler les perturbations ont permis d'obtenir les distributions de température lors d'un chauffage ou d'un refroidissement du moule. Une analyse à l'aide de la méthode inverse des relevés de température pris par trois thermocouples virtuels à travers l'épaisseur de la pièce est venue confirmer ce résultat. Dans le chapitre suivant, une analyse du moule en configuration de mesure longitudinale est menée dans le but d'évaluer la conductivité thermique plane d'un composite.

## **CHAPITRE 4**

### **ÉTUDE NUMÉRIQUE DE LA CONCEPTION DU MOULE EN CONFIGURATION DE « MESURE LONGITUDINALE »**

Dans le chapitre précédent, le moule en configuration de « mesure transverse » a été étudié à travers des simulations numériques afin de valider par des expériences virtuelles la procédure de mesure de la conductivité thermique transverse par méthode inverse. Ce chapitre adopte la même démarche afin d'évaluer la possibilité d'utiliser le même moule pour mesurer la conductivité plane du composite. Une configuration est d'abord adaptée à la mesure de conductivité longitudinale. Après avoir trouvé un maillage convergent, on examine ensuite la distribution de température dans la cavité afin d'établir si les conditions de mesure sont satisfaisantes. Plusieurs configurations sont analysées à l'aide de la méthode inverse, afin de définir la plus précise au moyen d'expériences virtuelles. Dans ce chapitre on ne prend pas en considération les réactions chimiques inhérentes aux matériaux composites : les différentes configurations sont étudiées pour des matériaux isotropes ou anisotropes solides.

#### **4.1 Modélisation du moule**

##### **4.1.1 Plan et matériaux utilisés**

Il est difficile de réaliser des pièces très épaisses en composite et de se placer ainsi dans les conditions d'approximation de type plaque infinie pour mesurer la conductivité plane. Il est donc nécessaire de concevoir un système expérimental qui permet, cette fois-ci, d'obtenir un transfert de chaleur le plus possible unidirectionnel dans le sens des fibres. A cette fin, la configuration de la Figure 4.1 est proposée, qui comprend plusieurs plaques isolantes en téflon entourées par le cadre en aluminium. Le

plan de coupe représenté sur cette figure et utilisé pour les simulations de ce chapitre est ici vertical et perpendiculaire au plan de coupe précédent, utilisé lors des simulations bidimensionnelles du chapitre 3. L'aluminium joue un rôle de garde thermique et permet d'avoir un état initial isotherme. Le téflon isole le système de chauffage et les plaques de composite situées de part et d'autre de la partie moulée dont on cherche à mesurer la conductivité plane. Les deux plaques composites cuites en fibres de verre, doivent avoir une conductivité longitudinale la plus proche possible de celle que l'on veut mesurer, afin d'uniformiser les transferts de chaleur dans la partie moulée. On espère ainsi obtenir une distribution de température avec des isothermes verticales, c'est-à-dire qui assurera un transfert de chaleur quasi-horizontal dans le matériau à caractériser.

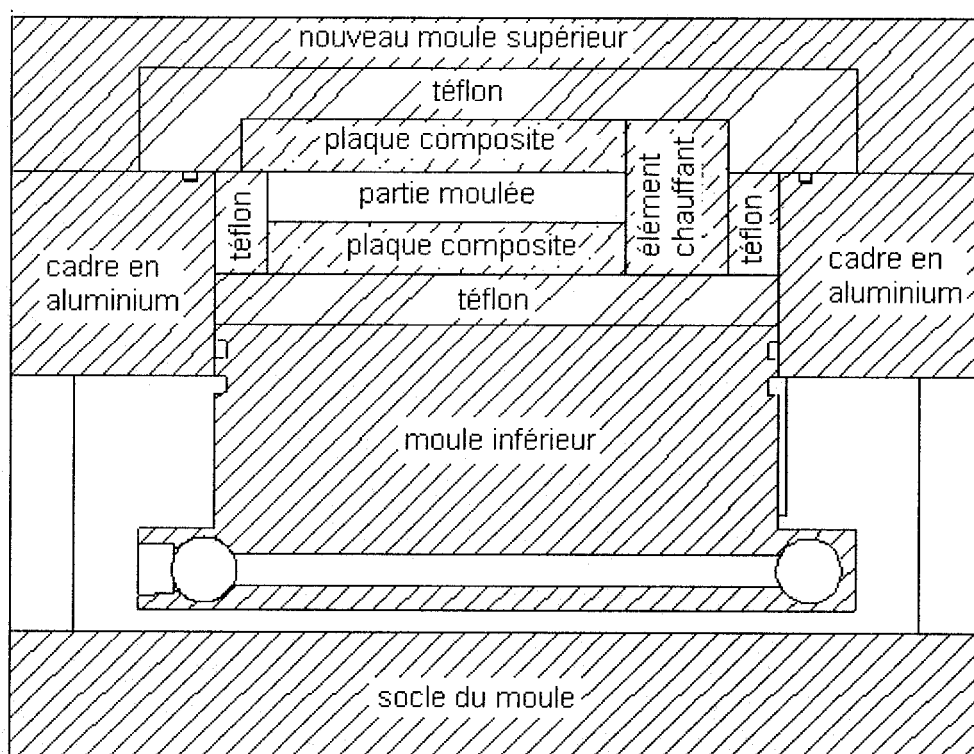


Figure 4.1 : Coupe du moule en configuration « conductivité longitudinale ».

Le moule est principalement constitué d'aluminium. Les capteurs de pression ne sont plus présents dans la coupe utilisée pour les simulations 2D. En effet, les

simulations qui suivent montrent que l'on doit effectuer les mesures de température au début du chauffage et dans une zone proche de l'élément chauffant, à cause de la dispersion de la chaleur après un certain temps d'expérimentation. Comme les capteurs de pression sont situés en bordure des deux largeurs du moule rectangulaire, ils n'auront pas d'influence sur la distribution de température au voisinage des thermocouples situés près de l'élément chauffant. On a déjà pu vérifier au chapitre précédent qu'en raison de leur écartement les capteurs de pression n'avaient pas d'influence lors de la mesure de conductivité thermique transverse; c'est donc encore le cas pour une mesure de la conductivité longitudinale, d'autant plus que la zone d'identification est isolée. Les propriétés thermiques du composite à identifier ne sont pas considérées comme dépendantes de la température. La verticalité des isothermes est vérifiée pour toute température. Les propriétés du composite sont générales. La dépendance en température de la conductivité et de la chaleur spécifique du composite n'a pas d'influence sur les résultats présentés dans cette partie. Toutefois plusieurs valeurs ont été prises afin de simuler une différence assez importante de conductivité entre le matériau à identifier et sa gaine. Les paramètres physiques utilisés pour les simulations de ce chapitre sont donnés dans le Tableau 4.1. L'élément chauffant possède les caractéristiques du cuivre.

	Densité (kg/m <sup>3</sup> )	Conductivité (W/mK)	Chaleur spécifique (J/Kg.°C)
Aluminium	2700	237	900
Téflon	2200	0,26	1000
échantillon	1500	2,5 ; 3 ; 3,5	1700
gaine	1500	2,5 ; 3 ; 3,5	1700
cuiivre	8900	400	385

Tableau 4.1 : Propriétés thermophysiques des matériaux.

#### 4.1.2 Validation du maillage

Le maillage a été réalisé avec le logiciel GMSH. On peut spécifier des conditions limites sur les bords de l'élément chauffant ou sur sa surface, au choix. L'épaisseur de

matériau à caractériser peut varier. Les épaisseurs des plaques de composite cuit seront ajustées pour respecter l'épaisseur totale de la cavité. La convergence du maillage a été vérifiée avec une épaisseur de 10 mm. Les longueurs caractéristiques du maillage sont deux fois plus petites pour les points situés en bordure de la cavité qu'au bord du moule. Les dispositifs d'injection et d'évent n'ont pas été modélisés, de même que les capteurs de pression, comme expliqué auparavant.

On compare à la Figure 4.2 les résultats obtenus avec le maillage retenu, un maillage deux fois plus fin et un maillage plus grossier. Les longueurs caractéristiques utilisées sont respectivement 0,8mm, 0,4mm et 0,2mm (voir à l'Annexe I les maillages 9, 10 et 11). La simulation consiste en une montée en température à la vitesse de 10°C/min (condition à l'élément de chauffage). Des senseurs de température sont placés dans le composite et dans le moule. Le graphique de la Figure 4.2 illustre l'augmentation de température obtenue à une position du moule avec chacun des maillages considérés. Notons que des résultats similaires ont été observés à plusieurs positions dans le moule. On remarque une divergence du résultat pour le maillage de longueur caractéristique 0,8mm. En revanche, les deux autres longueurs caractéristiques donnent des résultats identiques. Pour limiter le temps de calcul, le maillage dont la longueur caractéristique est 0,4mm (3530 éléments) sera choisi pour la suite de cette étude. D'autres simulations menées avec le maillage 12, de précision intermédiaire, ont permis de confirmer ce résultat.



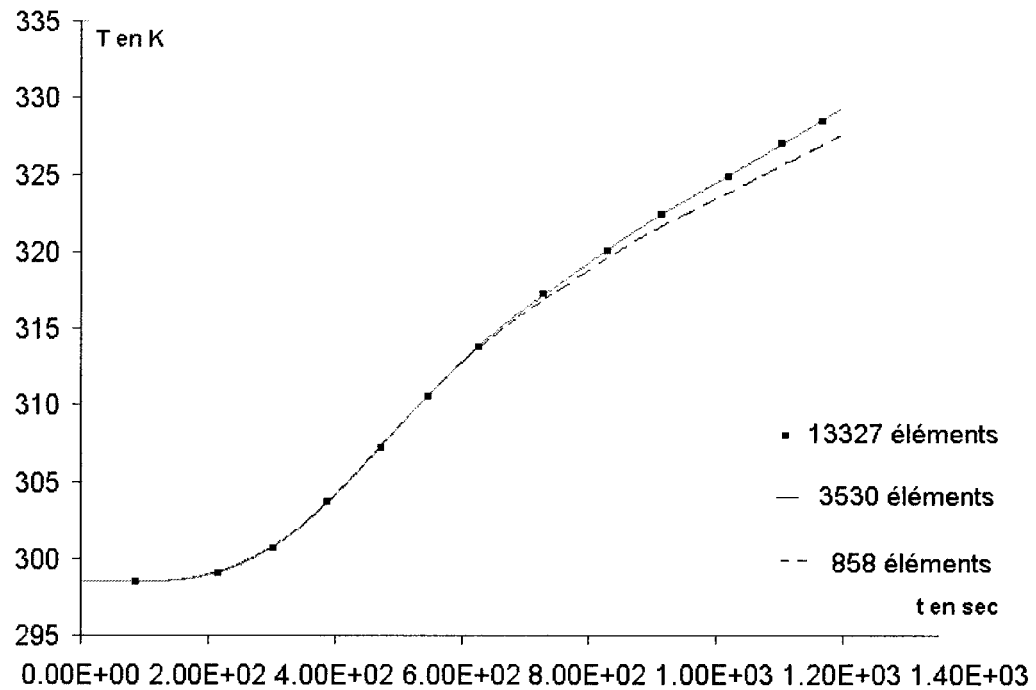


Figure 4.2 : Convergence du maillage.

## 4.2 Distribution de température et gradient

### 4.2.1 Conductivités identiques du matériau et de la gaine

Des simulations ont été menées pour des conductivités de 2.5, 3 et 3.5 W/mK pour le matériau à caractériser et pour la gaine en composite. Les résultats sont ici présentés uniquement dans le cas de 2.5 W/mK. On obtient des résultats très proches dans les deux autres cas. La condition de chauffage consiste en une montée en température à la vitesse de 10°C/min dans l'élément chauffant. L'épaisseur de la cavité est de 10 mm, comme la gaine composite dans ce cas-ci.

#### 4.2.1.1 Distribution de température

La Figure 4.3 montre la distribution de température au bout de 422 secondes, et la Figure 4.4 après 1082 secondes. L'élément chauffant est le rectangle dont la température est uniforme et la plus élevée. On constate que le téflon remplit son rôle isolant et que le front chaud se propage préférentiellement dans les parties composites. On remarque cependant sur la Figure 4.4 qu'après un certain temps, les transferts de chaleur sont moins unidirectionnels à proximité de l'élément chauffant, les isothermes étant plus incurvés. De plus le front n'est plus homogène à partir d'une certaine distance de l'élément chauffant. On se limitera donc dans les expériences à des temps inférieurs à 800 secondes, et on veillera à placer les thermocouples d'identification à 30mm au maximum de l'élément chauffant.

Des séries de senseurs à travers l'épaisseur de la cavité ont été placées tous les 10 mm à partir de l'élément chauffant. Pour vérifier que les isothermes sont bien verticaux, la différence de température entre le senseur situé au milieu de la cavité (à une certaine distance de l'élément chauffant) et ceux situés aux bords du moule (à la même distance de l'élément chauffant que celui placé au milieu de la cavité) a été mesurée en pourcentage dans le temps, et ce pour chaque série (à 10, 20, 30, 40 et 50 mm de l'élément chauffant). La Figure 4.5 donne les résultats de ces simulations. On constate que la différence est plus importante que dans le cas de la conductivité transverse, ce qui est dû au montage et qui est logique. Toutefois cet écart reste inférieur à 1%, ce qui permet d'affirmer que cette configuration du moule est satisfaisante pour identifier la conductivité thermique dans le plan. Pour deux matériaux de conductivité 3.5W/mK, on obtient un écart maximal de 0.7%. On constate donc une amélioration de la précision de la mesure avec l'augmentation de la conductivité.

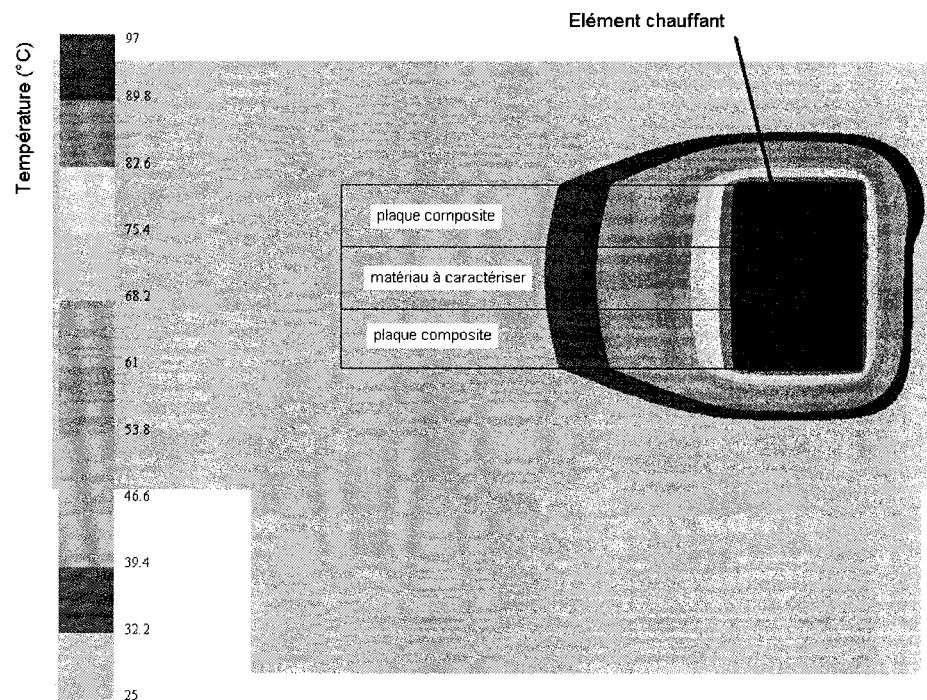


Figure 4.3 : Distribution de Température à 422s, configuration longitudinale.

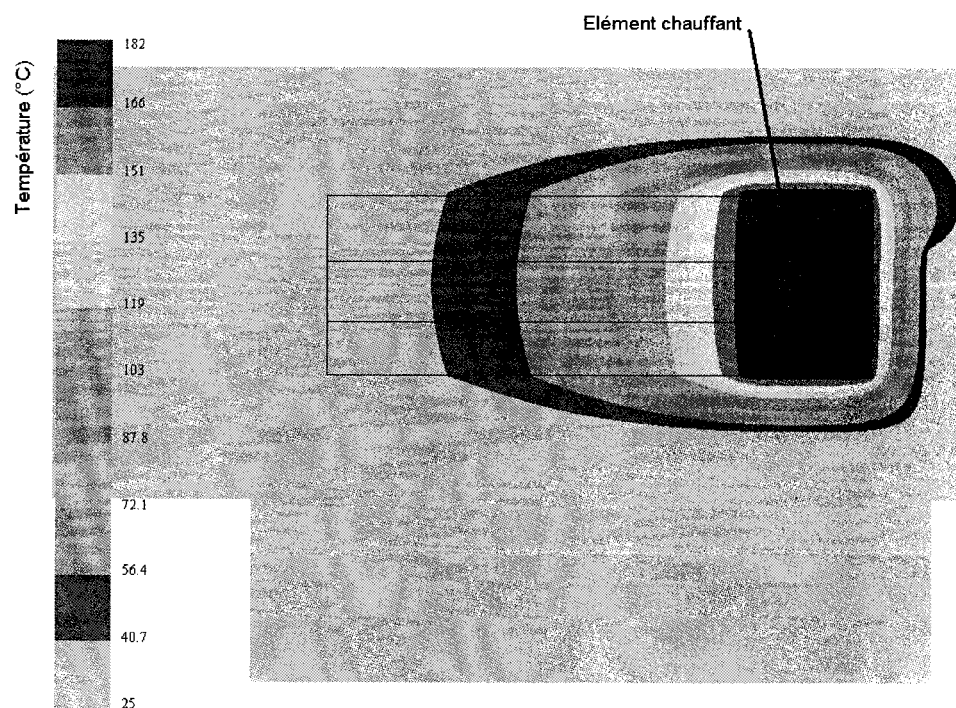


Figure 4.4 : Distribution de température à 1082s, configuration longitudinale.

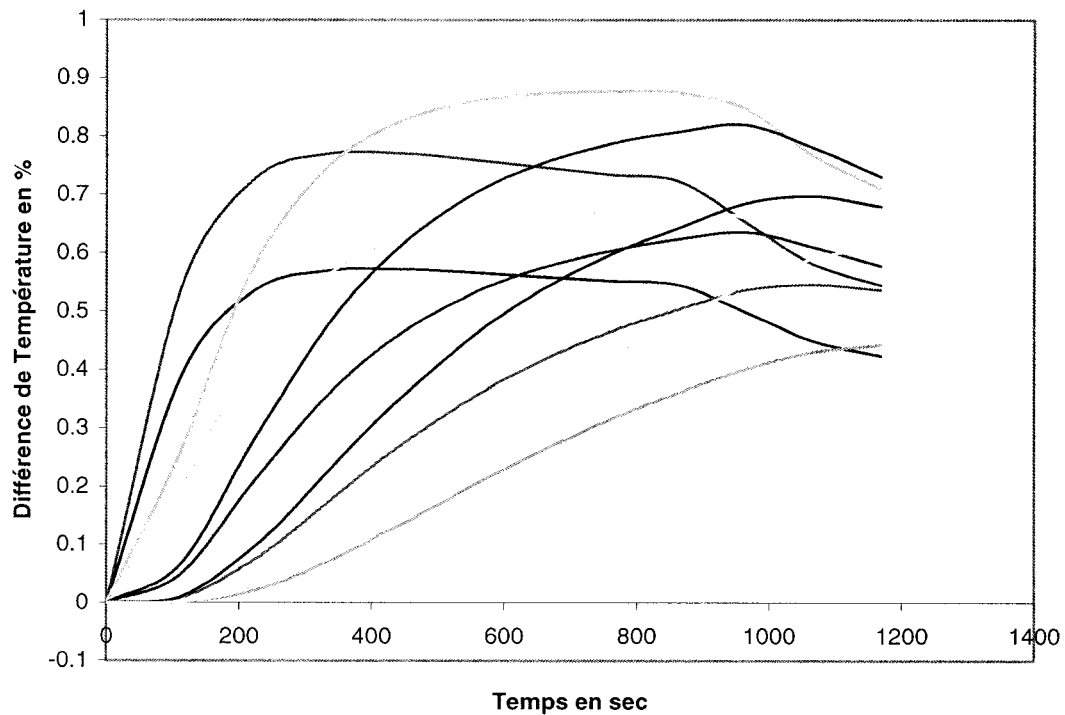


Figure 4.5 : Pourcentage de différence entre les températures de milieu et de bord de la cavité.

#### 4.2.1.2 Gradient de température

Le profil de température dans la longueur de la cavité a tout d'abord été étudié en fonction du temps. La Figure 4.6 montre l'évolution de la température dans la direction longitudinale pour des temps régulièrement espacés de 110 s. A partir d'environ 900 secondes, on constate que la pente des courbes diminue avec le temps. Cela confirme qu'à partir de ce temps environ, les transferts de chaleur ont tendance à ne plus être unidirectionnels. La Figure 4.7 confirme cette observation, et l'on constate une nette diminution du gradient au voisinage de l'élément chauffant à partir de 950 secondes environ.

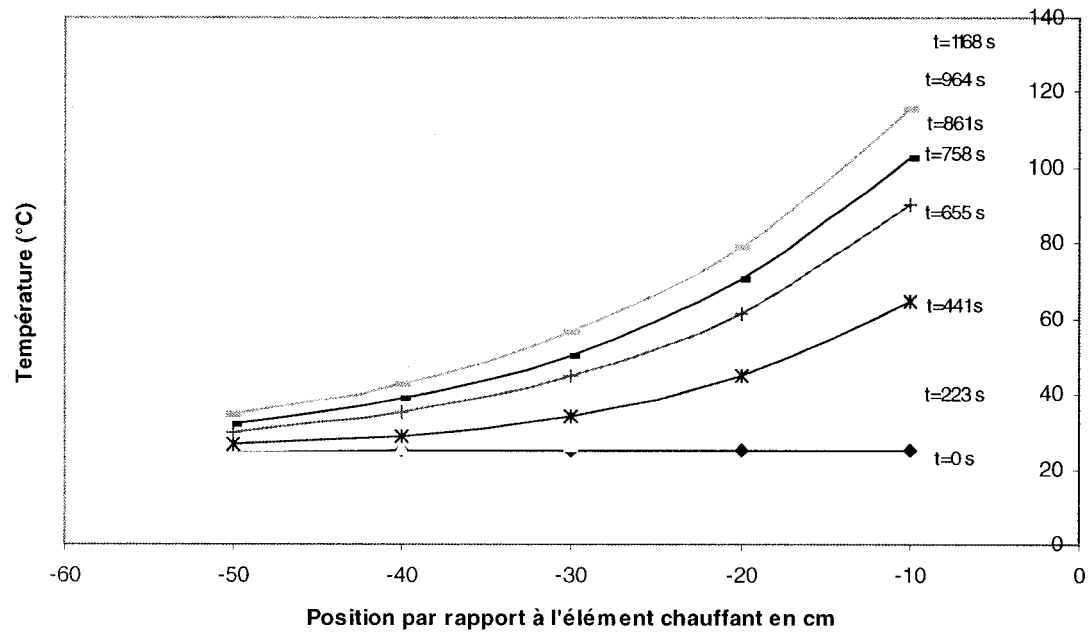


Figure 4.6 : Profils de température dans la longueur de la cavité lors d'un chauffage à vitesse constante.

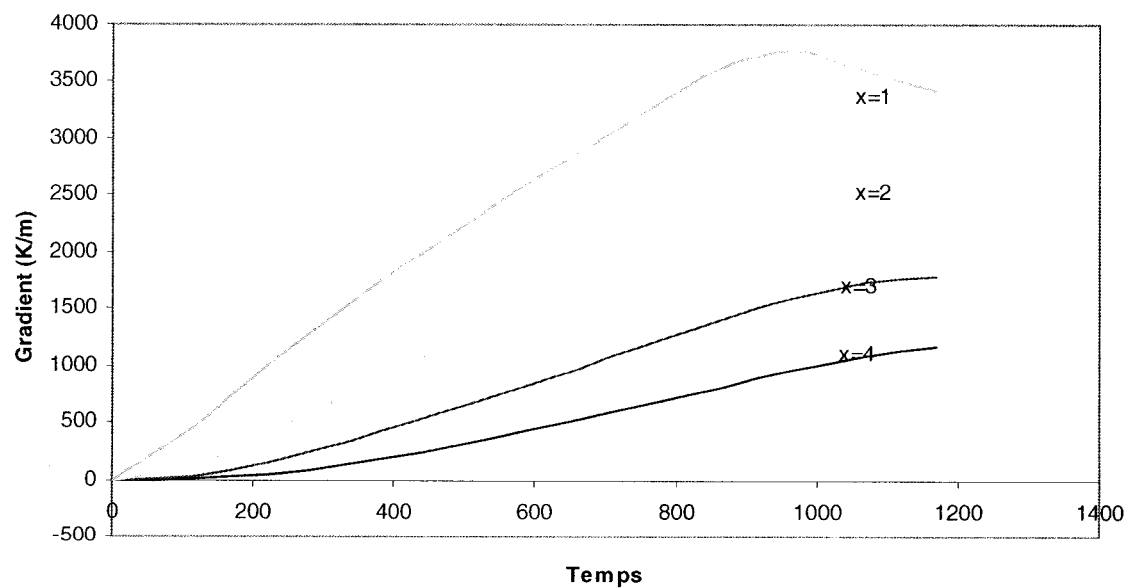


Figure 4.7 : Évolution du gradient dans le temps à des distances différentes  $x$  (en cm) de l'élément chauffant.

Pour bien mesurer l'unidirectionnalité des transferts de chaleur, le gradient de température horizontal a été comparé avec le gradient vertical. La Figure 4.8 donne ces résultats à 4 épaisseurs différentes, où «  $z$  » est la distance en millimètres du point de mesure par rapport au centre de la cavité. Près du bord de la cavité, le gradient vertical n'est pas négligeable, mais au milieu de celle-ci, il représente moins de 0.5% du gradient horizontal. On devra donc assurer une bonne précision dans le placement des thermocouples selon l'épaisseur. Ceux-ci devront se trouver le plus proche possible du centre de la cavité. Cette précision est plus importante que dans le cas transverse, car la position du point de mesure a une grande influence sur les relevés de température et peut entraîner une erreur plus grande.

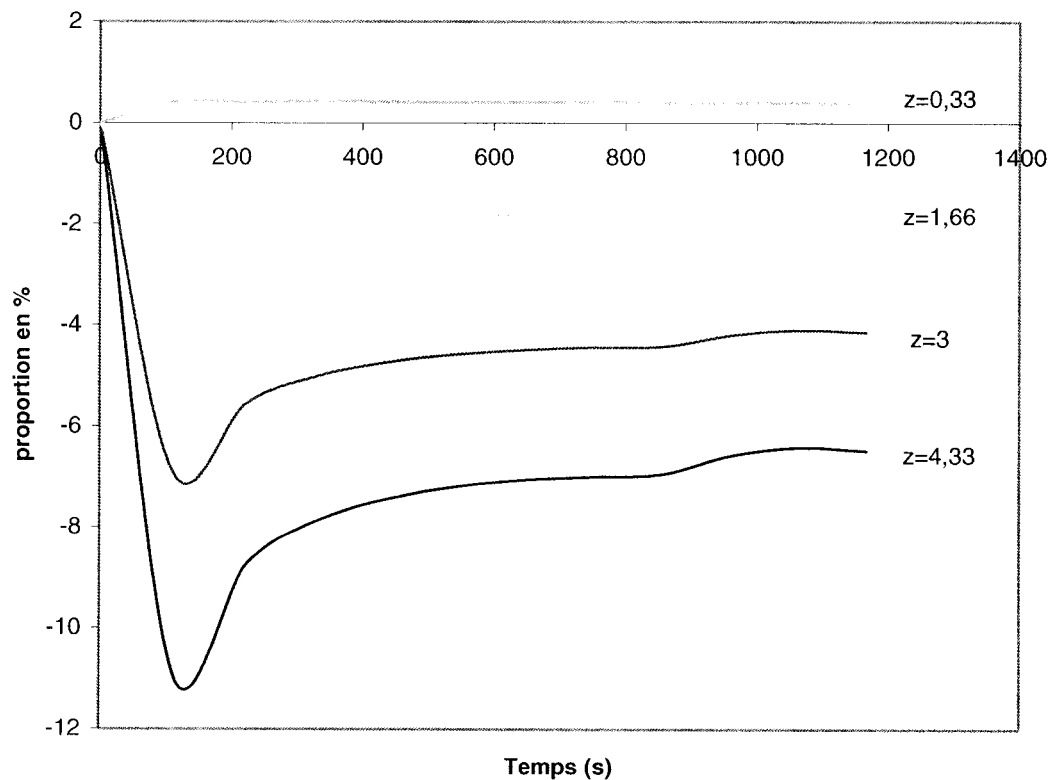


Figure 4.8 : Pourcentage du gradient vertical par rapport au gradient horizontal dans le temps.

#### **4.2.2 Conductivités différentes dans la gaine et dans le matériau à caractériser**

Des simulations ont été effectuées afin de connaître l'écart qui apparaît entre les cas étudiés précédemment, où les propriétés thermiques du composite et de la gaine sont idéalement identiques, et des cas où les propriétés thermiques du composite sont différentes de celles de la gaine. Les températures relevées dans les cas idéaux précédents servent de référence pour comparer avec les nouvelles températures calculées.

##### **4.2.2.1 Gaine moins conductrice**

Une simulation de chauffage à vitesse constante pour des conductivités de 2.5 et 3.5 W/mK respectivement pour la gaine et le composite a été effectuée pour déterminer l'influence de cette différence. Cette différence a été choisie de sorte à évaluer l'effet maximal d'une telle perturbation. On ne constate pas sur la Figure 4.9 de différence majeure avec le cas précédent idéal (où les deux conductivités thermiques sont égales à 3.5W/mK). Toutefois on peut identifier une courbure un peu plus importante des isothermes. Cela est dû en grande partie au temps déjà avancé de cette représentation du champ de température. On doit donc mesurer de manière précise la perturbation. On se fixe comme référence les températures relevées par les senseurs dans le cas idéal, que l'on estime être suffisamment précis pour effectuer une mesure de conductivité longitudinale. On va alors comparer les températures relevées par des senseurs situés aux mêmes endroits pour ce cas non idéal. La Figure 4.10 représente la différence calculée en pourcentage dans le temps pour cinq senseurs situés au milieu de l'épaisseur de la cavité et à aux distances indiquées sur les courbes.

On constate que seuls les deux senseurs les plus proches de l'élément chauffant présentent une erreur inférieure à 5%. A une distance supérieure, l'erreur est dans un

premier temps inférieure, mais cela correspond à la période où le gradient de température est faible dans cette zone. La mesure ne sera donc pas plus précise.

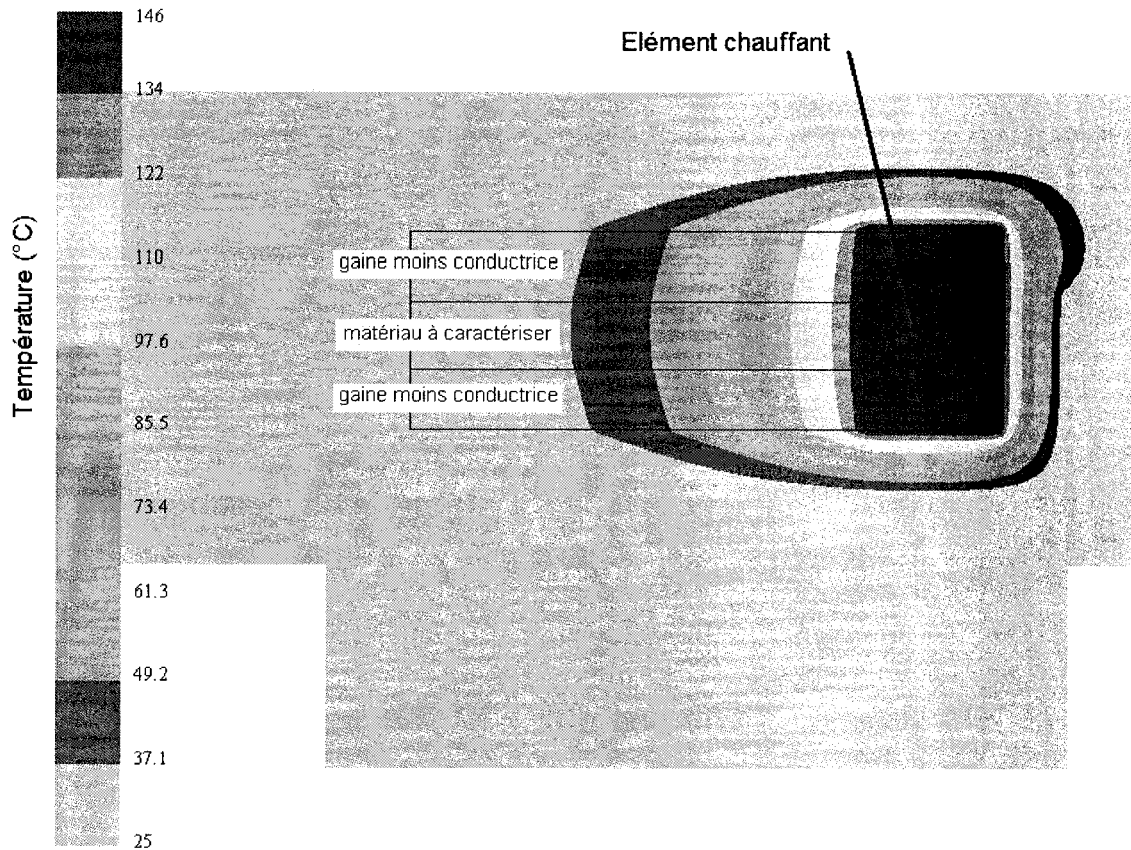


Figure 4.9 : Distribution de température au temps  $t=722$  s.

Nous constatons donc que si l'on veut rester dans une marge d'erreur de 5%, on doit limiter la zone exploitable pour les mesures à environ 25 mm de l'élément chauffant, tout en limitant si possible la durée de l'expérience. En limitant à 500 s, et en positionnant des senseurs à moins de 30 mm de l'élément chauffant, le Figure 4.10 montre qu'on obtiendrait moins de 6% d'erreur.



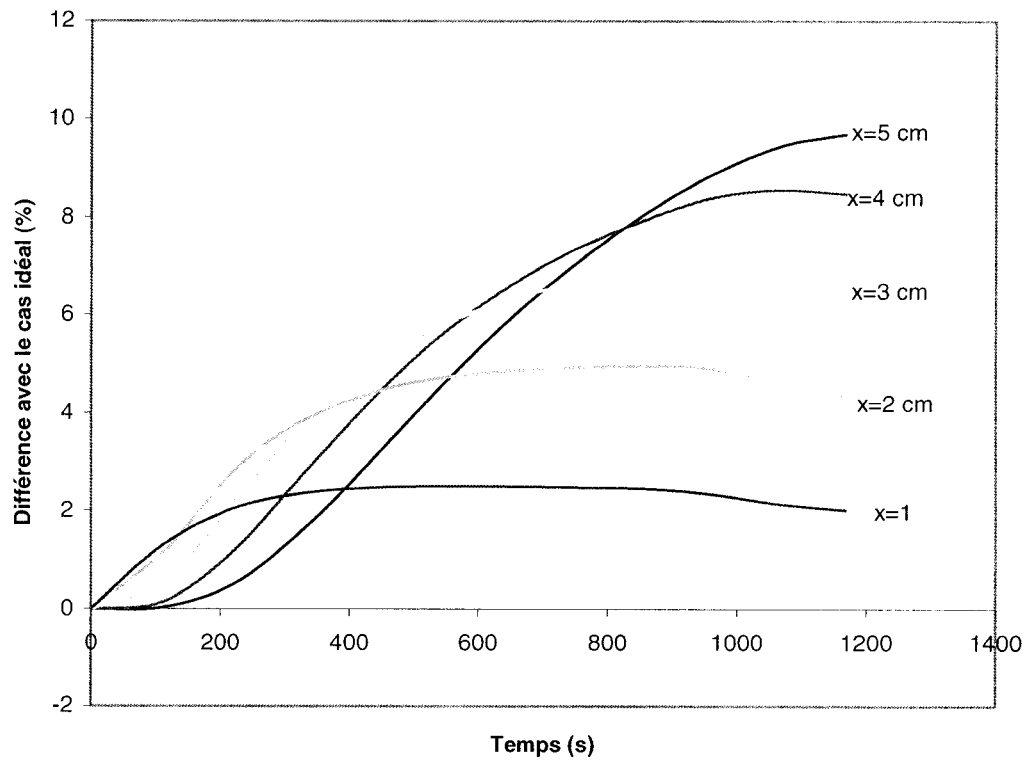


Figure 4.10 : Différence de température avec le cas idéal en fonction du temps, pour différents senseurs positionnés selon la longueur de la cavité.

#### 4.2.2.2 Gaine plus conductrice

On obtient la même conclusion quand la gaine est plus conductrice que le matériau composite à caractériser (ici respectivement 3.5 et 2.5 W/mK), comme on le constate sur la Figure 4.11. On doit donc se limiter à un temps d'expérimentation relativement court. On doit placer les thermocouples à moins de 30 mm de l'élément chauffant et les positionner au milieu de l'épaisseur du composite avec le plus de précision possible.

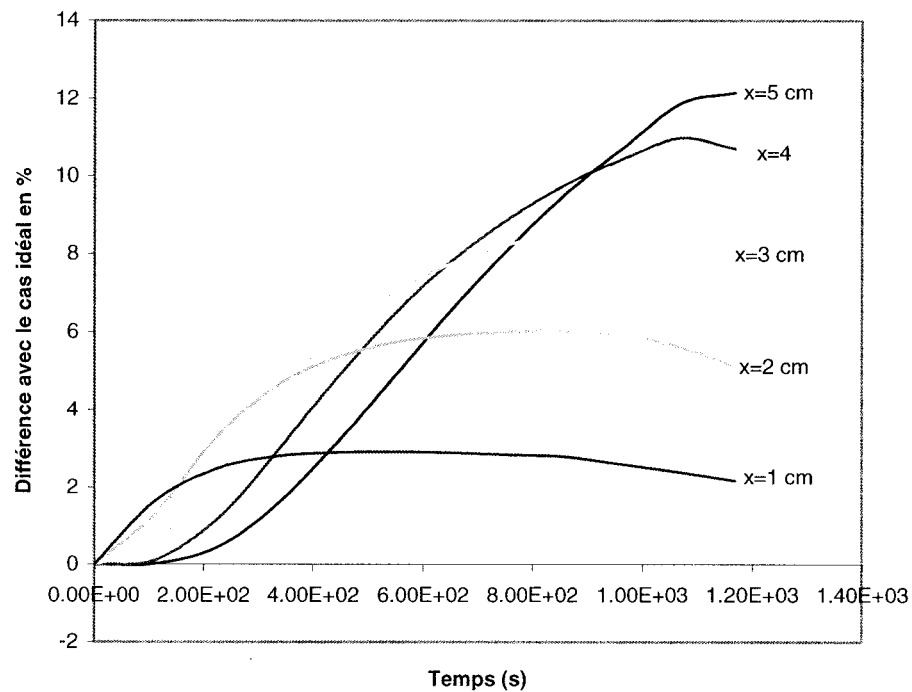


Figure 4.11 : Différence de température avec le cas idéal en fonction du temps pour différentes positions de senseurs de température.

#### 4.2.3 Influence de l'épaisseur de la cavité

On étudie ici l'influence de l'épaisseur de la cavité sur les relevés de température, et donc sur l'identification de la conductivité. Les simulations ont été effectuées dans le cas présenté dans le paragraphe précédent. On cherche à comparer les relevés de température obtenus en plaçant un thermocouple au milieu de la pièce composite, pour différentes épaisseurs. A chaque simulation, un senseur a donc été placé au milieu dans l'épaisseur de la cavité à 10mm de l'élément chauffant pour des épaisseurs allant de 2mm à 12mm. La Figure 4.12 montre l'écart en pourcentage des cas 2, 4, 6, 8 et 10mm par rapport au cas 12mm. Ce cas a été pris en référence car la différence est très faible par rapport au cas 10mm (moins de 0.3%), il est donc inutile d'étudier des épaisseurs

plus importantes, d'autant que le montage prévu ne nous permettrait pas de réaliser une telle expérience.

On constate que l'erreur augmente logiquement avec la réduction de l'épaisseur de la cavité, mais qu'elle reste tolérable (1,3% au maximum). Il faut toutefois prendre en considération que cette comparaison a été effectuée proche de l'élément chauffant, et que l'on a vu que l'erreur augmente avec la distance à celui-ci. Il conviendra donc de minimiser l'erreur due à l'épaisseur. Pour cela on choisira l'épaisseur de la cavité la plus proche possible de 10mm (le cas symétrique), en fonction du taux de fibre nécessaire.

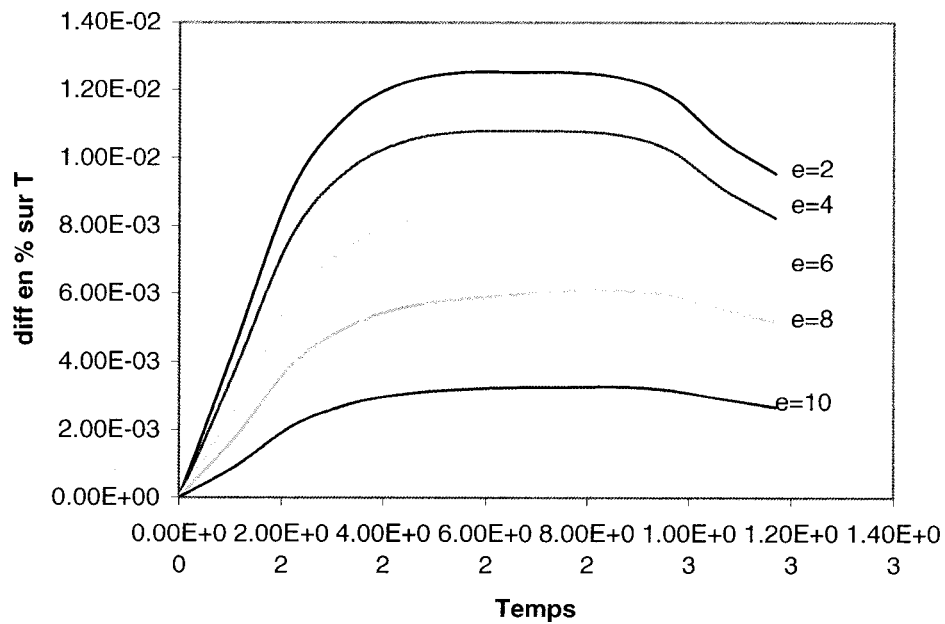


Figure 4.12 : Erreur due à l'épaisseur de la cavité en fonction du temps (épaisseur e en mm).

### **4.3 Analyse avec la méthode inverse**

Comme dans le cas transverse, on reproduit des expériences virtuelles à l'aide de LCMFlot, puis on tente d'identifier la conductivité thermique du matériau testé. Dans cette partie, on cherche à trouver la configuration expérimentale la mieux adaptée au matériel disponible : moule, système de mesure, programme d'identification. Trois configurations principales sont testées (configuration précédente, configuration avec chauffage en gaine et configuration avec deux éléments chauffants) pour deux modes de chauffage (pente de 13°C/min et échelon à 450K) et deux modes d'isolation de la pièce testée du reste du moule (par du téflon ou par le même matériau), et enfin pour 4 matériaux dont les caractéristiques thermiques balaient les possibilités pour les composites.

#### **4.3.1 Les différentes configurations testées**

On a vu au chapitre 3 qu'il est judicieux dans le cadre d'une étude avec des senseurs de température d'utiliser des éléments rectangulaires, afin de placer les senseurs exactement sur les nœuds et gagner ainsi en précision dans l'analyse inverse. Le maillage 15 (Annexe I) bidimensionnel est utilisé dans le cadre de cette étude. Il est découpé en zones et conditions limites de sorte à servir pour les trois configurations.

##### **4.3.1.1 Configuration initiale**

Il s'agit de la configuration que l'on a vue précédemment dans ce chapitre. La Figure 4.13 indique le positionnement des thermocouples qui sont situés respectivement à 3, 8 et 13 mm de l'élément chauffant. Les zones « Téflon/composite » sont celles qui servent à définir le mode d'isolation du matériau à caractériser.

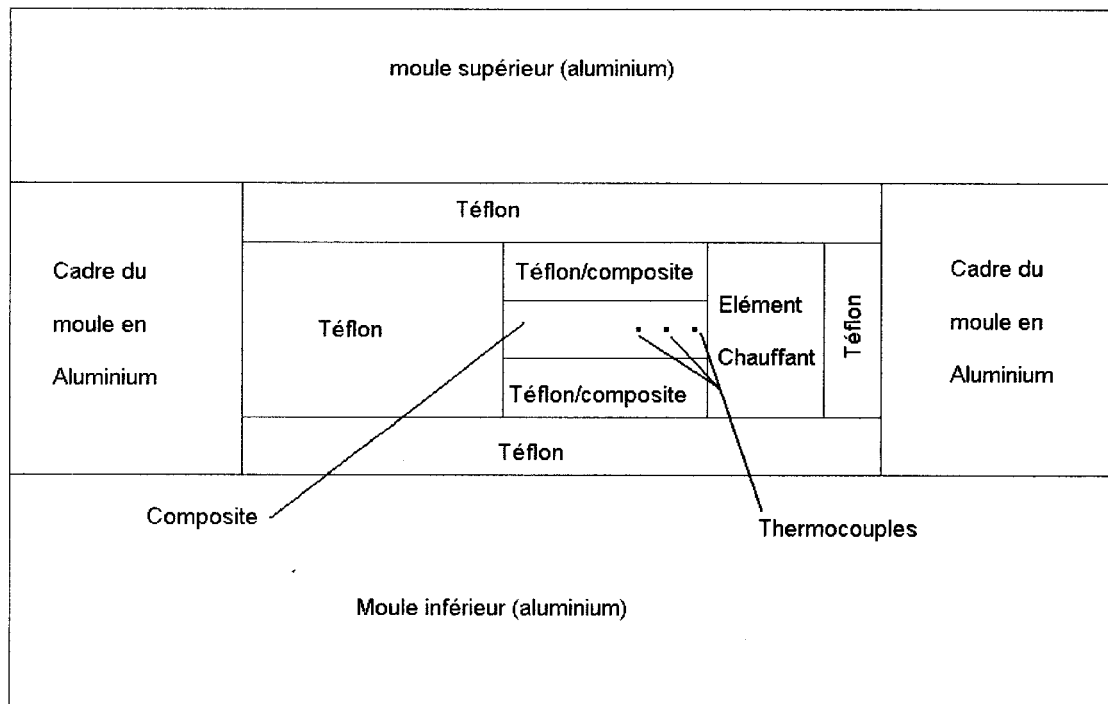


Figure 4.13 : Configuration initiale pour caractérisation thermique avec la méthode inverse.

#### 4.3.1.2 Configuration avec gaine de chauffage

Cette configuration est peu différente de la précédente, si ce n'est par la forme de l'élément chauffant. Celui-ci forme une gaine autour du matériau à caractériser. Le procédé ne peut à priori être efficace que dans le cas où l'on entoure le composite d'un matériau bien moins conducteur, la gaine assurant alors un chauffage du composite avec une surface de contact plus grande. La possibilité d'insérer le composite dans une gaine de conductivité moyenne a aussi été évaluée, mais les résultats sont peu probants. La Figure 4.14 montre la disposition de la gaine et indique la position des thermocouples utilisés pour l'identification.

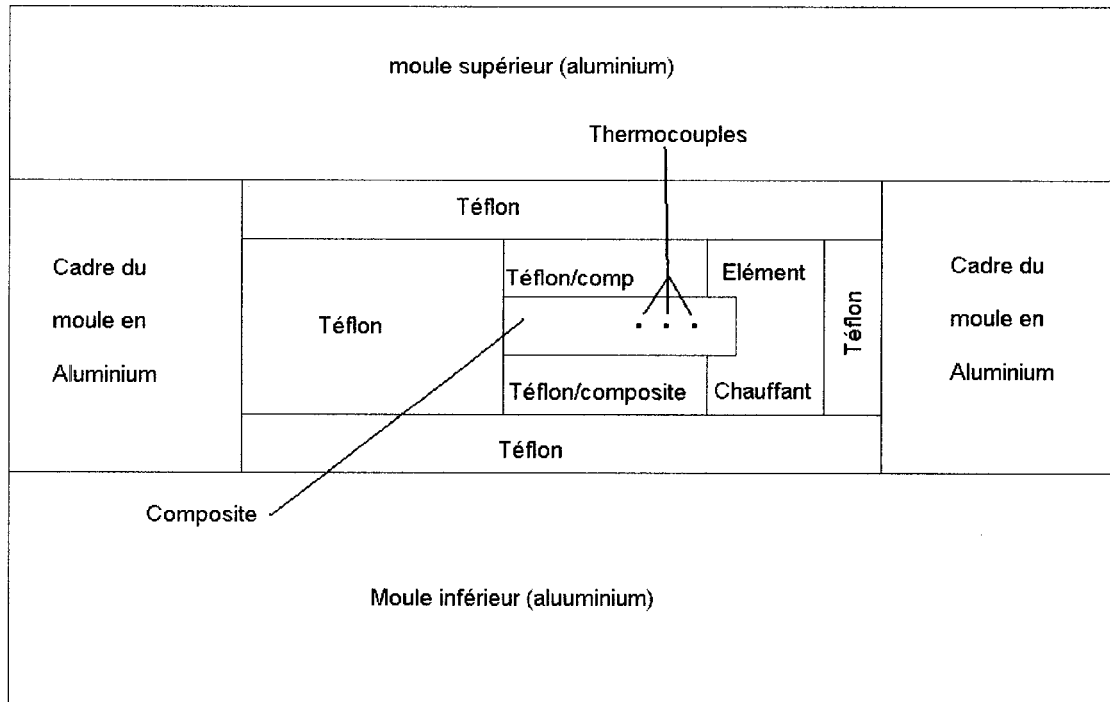


Figure 4.14 : Configuration avec chauffage en gaine pour caractérisation thermique avec la méthode inverse.

#### 4.3.1.3 Configuration avec deux éléments de chauffage

Les résultats présentés ci-après ont poussé à chercher un autre mode de chauffage. Cette configuration se rapproche de la mesure de conductivité thermique transverse, car la pièce à caractériser est chauffée des deux côtés. Des simulations préalables ont permis de définir un écartement de 15 mm entre les deux éléments chauffants. Les autres écartements testés étaient de 20, 30, 40 et 50 mm. Une largeur plus faible serait très difficilement réalisable en pratique. La Figure 4.15 montre où sont placés les éléments chauffant et les thermocouples dans le moule.

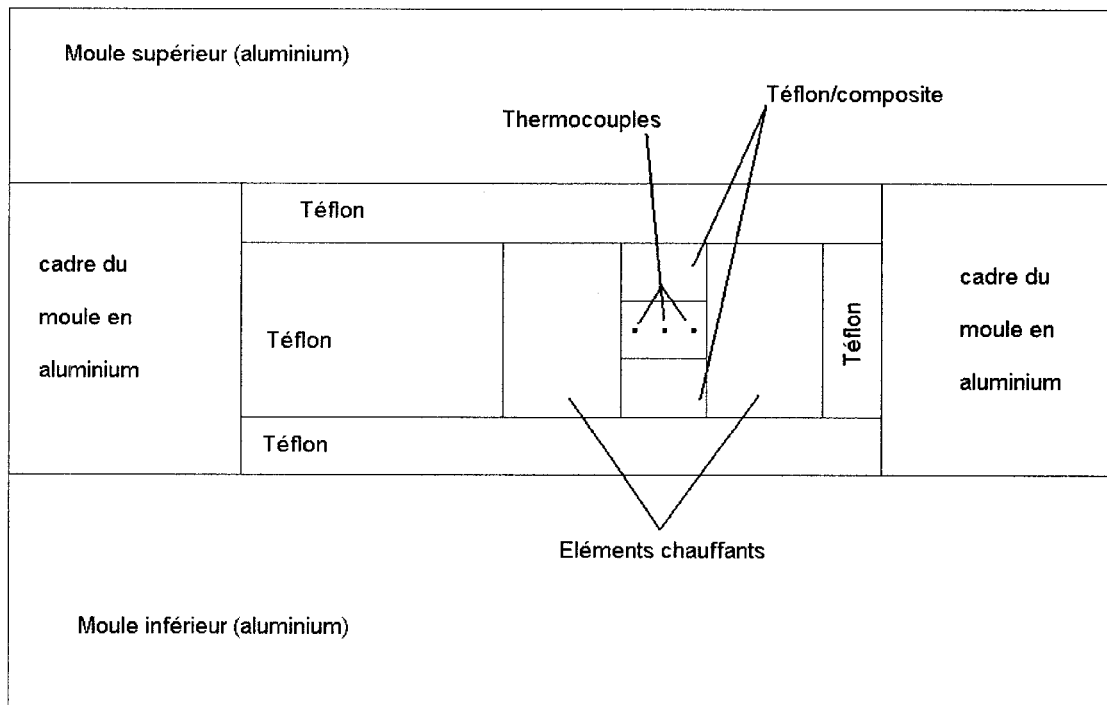


Figure 4.15 : Configuration avec deux éléments chauffants pour caractérisation thermique par la méthode inverse.

#### 4.3.2 Matériaux testés

Plusieurs matériaux ont été utilisés pour illustrer les principales possibilités offertes par les matériaux composites. Ces matériaux ne sont pas isotropes. On considère ici qu'ils possèdent une conductivité thermique transverse environ égale à la moitié de leur conductivité dans le plan des fibres. Seule la conductivité thermique varie, la densité et la chaleur spécifique restent constantes. Les propriétés physiques de ces matériaux utilisés dans LCMFlot sont regroupées dans le Tableau 4.2. Ce sont des matériaux composites généraux ne représentant pas de fibres ou de résine particuliers. Les propriétés de l'aluminium, du téflon et du cuivre (éléments chauffants) sont disponibles dans le Tableau 4.1.

Tableau 4.2 : Matériaux composites virtuels testés pour la caractérisation thermique par la méthode inverse.

Matériau	Densité (kg/m <sup>3</sup> )	Conductivité transverse (W/mK)	Conductivité longitudinale (W/mK)	Chaleur spécifique (J/kg.°C)
composite 1	1500	0.3	0.6	1700
composite 2	1500	1	1.5	1700
composite 3	1500	1.5	3	1700
composite 4	1500	2	4	1700
composite 5	1500	2.25	4.5	1700
composite 6	1500	3	6	1700

### 4.3.3 Résultats

Les simulations pour toutes les configurations présentées (12 possibilités) ont été menées avec les composites 1, 2, 3 et 6. Les relevés de température donnés par les thermocouples virtuels ont été utilisés dans le programme d'identification de la conductivité thermique. Les 700 premiers pas, soit les 700 premières secondes d'expérience, ont été utilisés à chaque identification. Les huit températures pour lesquelles la conductivité thermique est identifiée sont espacées de 5°C entre 320K et 355K.

#### 4.3.3.1 Configurations initiale et avec gaine de chauffage

D'une manière générale, ces configurations ne sont pas satisfaisantes pour l'expérimentation. Lorsque l'on chauffe avec une gaine et que l'on isole le composite



avec le même matériau, les échanges thermiques sont assez peu horizontaux, et le programme d'identification ne converge pas vers un résultat stable. Le résultat obtenu dépend en effet de la conductivité thermique imposée au départ, et est souvent égal à celle-ci. Lorsque l'on isole avec du téflon, les résultats ne s'améliorent qu'avec le composite 6, plus conducteur thermiquement que les autres, mais restent dans l'ensemble instables. La configuration initiale fournit de meilleurs résultats quand on l'entoure avec le composite avec lui-même. On constate alors, comme on l'a vu précédemment, que c'est cette configuration qui conserve le mieux le caractère unidirectionnel des transferts thermiques. On est capable de retrouver une conductivité thermique proche de la réalité, à condition toutefois de se trouver dans une plage assez proche au démarrage des itérations de la méthode inverse. Dans le cas du chauffage en échelon, cette marge est même très réduite. Si l'on part de conductivités un peu plus éloignées, le programme ne converge plus (en partant d'une conductivité de 2 pour identifier 1.5, le résultat donné peut être 2 par exemple). En faisant plusieurs essais avec différentes conductivités de départ et en comparant les critères obtenus à la fin des itérations de la méthode inverse, on peut donc constater que les transferts thermiques sont corrects, mais que les relevés de température sont inutilisables si l'on ne connaît pas à l'avance l'ordre de grandeur de la conductivité thermique. Ce phénomène est sans doute dû à l'existence de multiples minima locaux pour la fonction critère  $J(\lambda)$  (cf Chapitre 2), ou d'une trop faible variation de cette fonction qui entraîne le blocage du processus de correction des conductivités recherchées (voir toujours méthode inverse [18]). Ces deux configurations sont donc en pratique inutilisables avec le matériel disponible.

Dans tous ces cas, c'est la sensibilité de la méthode inverse aux relevés de température qui fait que ces configurations ne sont pas satisfaisantes. En effet, alors que l'on a vu que les transferts de chaleur semblent unidirectionnels de manière assez satisfaisante dans un premier temps, il s'avère que les légères variations par rapport au cas idéal impliquent une divergence ou une instabilité de l'algorithme de la méthode inverse.

#### 4.3.3.2 Configuration avec deux éléments chauffants

Cette configuration se rapproche de la méthode utilisée au chapitre 3 et donne les résultats les plus satisfaisants en terme de stabilité du programme d'identification, dans le cas où le composite est entouré par deux autres couches de composite. A partir de diverses valeurs de la conductivité thermique, le programme converge vers le même résultat. Cette valeur est plus faible que la conductivité thermique recherchée, à cause des pertes de chaleur vers l'extérieur du système composé des plaques de composite et des éléments chauffants. On constate toutefois que la différence est fonction de la température à laquelle on recherche cette conductivité et suit une relation directe avec la conductivité réelle. Pour vérifier cette relation, des simulations ont été effectuées pour les composites 4 et 5. La Figure 4.16 montre les résultats pour les six matériaux étudiés : chaque courbe représente la conductivité thermique identifiée en fonction de la conductivité thermique réelle, à une température donnée (parmi les températures d'identification données dans le programme).

La courbe pour 350 K présente au moins un point ne respectant pas la relation linéaire mise en évidence sur ces courbes. Aux autres températures, et au moins pour les températures intermédiaires (325 à 340 K), la relation linéaire est respectée. Il existe donc la possibilité d'utiliser cette relation comme un facteur correctif à appliquer à la conductivité déterminée pour un matériau composite lors d'une mesure. Toutefois, un tel facteur de correction n'est valable que pour la configuration exacte définie à la Figure 4.15 pour un matériau donc la densité et la chaleur spécifique sont donnés dans le Tableau 4.2. Cette méthode est donc utilisable, mais sa mise en oeuvre pratique est lourde et fastidieuse en raison de l'étalonnage requis pour chaque matériau à identifier, mais aussi pour chaque configuration du moule, notamment quand l'épaisseur de cavité change afin de faire varier le taux de fibres par exemple.

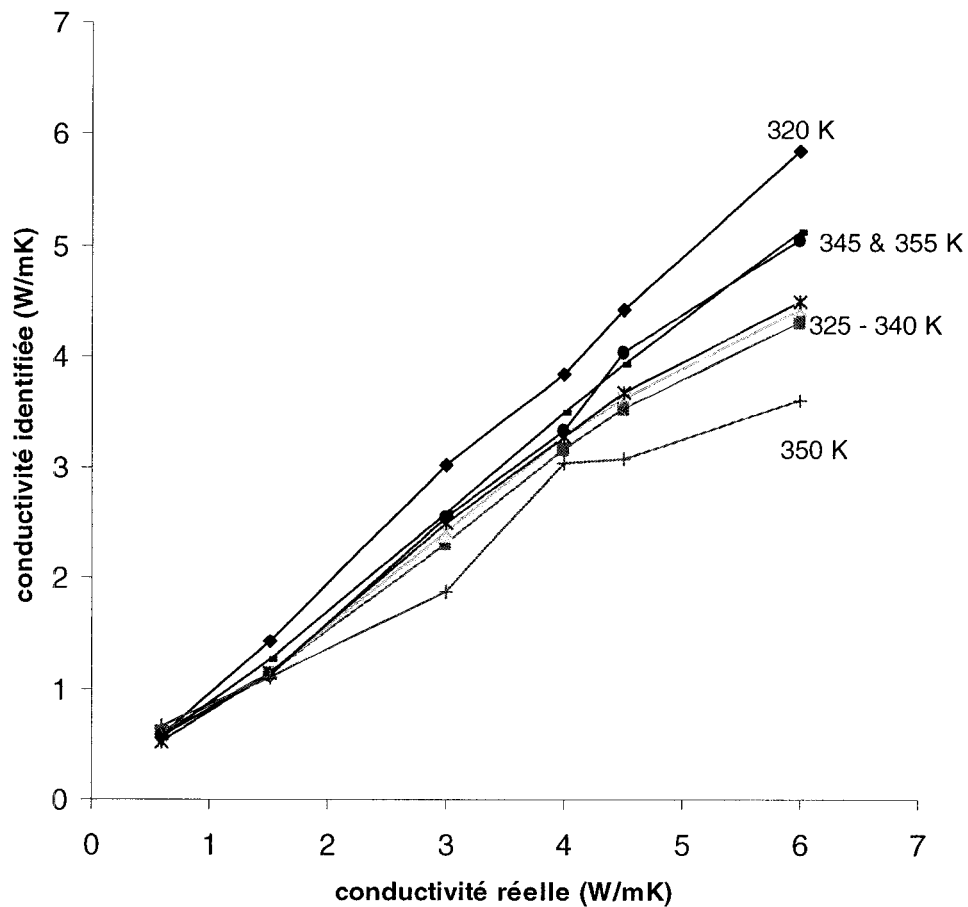


Figure 4.16 : Relation entre conductivité identifiée et la conductivité réelle.

#### 4.4 Solution proposée

L'objectif initial était de proposer une méthode de mesure de la conductivité thermique longitudinale facile à mettre en œuvre expérimentalement avec le moule disponible. Cela impliquait une contrainte sur l'épaisseur de la pièce qui s'avère rédhibitoire. Bien que les transferts de chaleur semblent suffisamment unidirectionnels, la méthode inverse employée pour identifier la conductivité thermique est très sensible à la différence existant entre le cas unidirectionnel et les cas étudiés ici, qui diffèrent légèrement du cas idéal. On ne peut donc pas mesurer facilement et précisément la

conductivité thermique dans le plan des fibres si l'on place celles-ci normalement dans le moule avant injection. Pour avoir une épaisseur de cavité plus grande, il faudrait concevoir un autre moule, mais on se retrouverait dans la situation que l'on voulait éviter au départ : l'obligation de fabriquer des pièces très épaisses, ce qui est fastidieux

La solution retenue consiste à utiliser les résultats du Chapitre 3 pour mesurer la conductivité thermique longitudinale. En effet, la configuration transverse a été validée et permet de caractériser n'importe quelle conductivité thermique selon une direction verticale. Le principe sera donc de disposer les fibres verticalement dans le moule et d'utiliser la méthode décrite pour identifier la conductivité transverse. La conductivité thermique longitudinale sera donc cette fois identifiée avec précision.

Toutefois, cette solution n'est facile à réaliser en pratique expérimentalement. Les fibres doivent être compactées dans le procédé RTM, et le moule n'est pas prévu pour réaliser une compaction horizontale. Deux cas peuvent être envisagés. Il est possible de concevoir un dispositif permettant de compacter les fibres avant de les insérer dans le moule comme le montre la Figure 4.17. L'ensemble serait ensuite inséré dans le moule avant fermeture puis injection. L'important est d'assurer que le dispositif ne perturbe pas les transferts thermiques et donc la précision des mesures. La deuxième possibilité est de fabriquer normalement une pièce relativement épaisse en prenant soin d'y incorporer des thermocouples placés horizontalement. Après démoulage de la pièce, celle-ci est découpée en parties de 25 mm de large, de manière à ce que les thermocouples soient dans la même partie. Ces morceaux sont ensuite placés verticalement dans le moule. On se retrouve alors dans la configuration étudiée au chapitre 3. Cette méthode a l'avantage d'être moins fastidieuse que la première, mais ne permet de caractériser que des composites cuits, alors que la première méthode permet d'effectuer des mesures avant ou pendant la réaction chimique de polymérisation. Elle permet toutefois de valider expérimentalement des modèles pour la conductivité longitudinale, car on peut déterminer la conductivité thermique de la résine avec la méthode d'identification

transverse. Ces deux méthodes couplées permettent donc de caractériser complètement la conductivité thermique d'un composite.

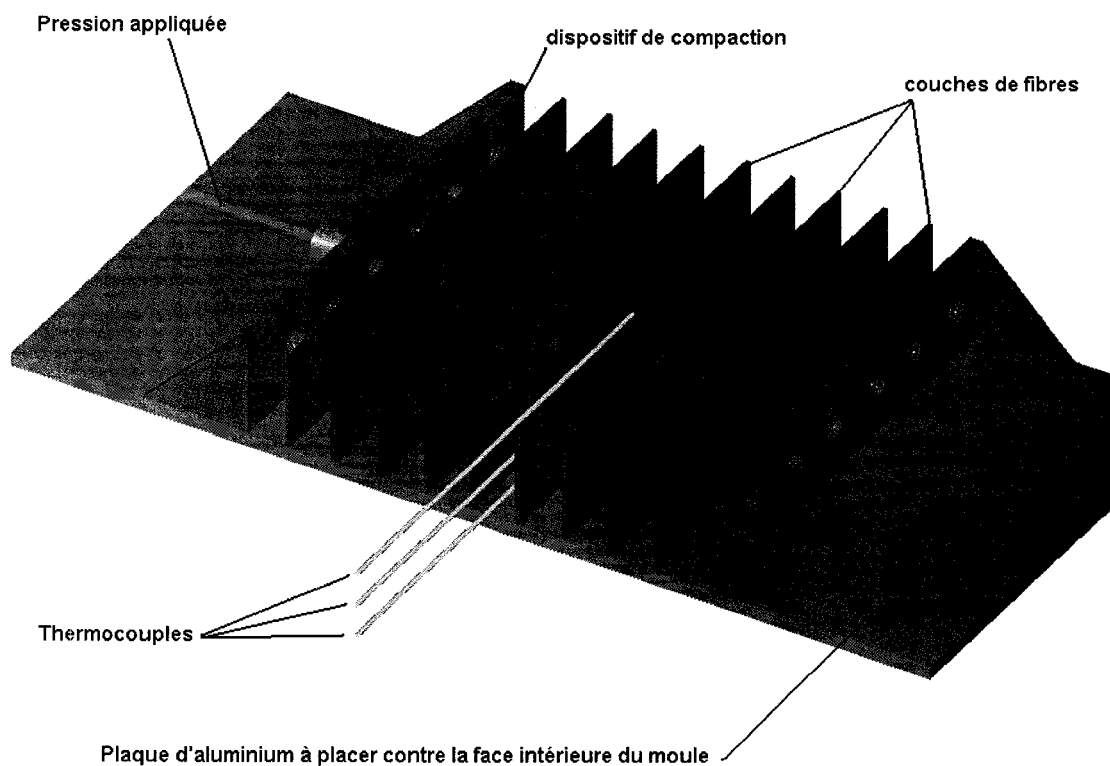


Figure 4.17 : Dispositif de compaction des fibres pour mesurer la conductivité longitudinale avec le dispositif transverse.

#### 4.5 Conclusion

Des simulations avec le programme LCMflot ont permis de montrer que certaines configurations (initiale, chauffage double) permettent d'obtenir des transferts thermiques relativement unidirectionnels sur une période et dans un espace réduits. Toutefois, les relevés de température obtenus ne permettent pas d'obtenir directement la conductivité thermique du matériau caractérisé. Dans certains cas, le programme d'identification par méthode inverse donne des minima locaux et ne converge pas vers la solution réelle.

Dans le cas du chauffage par les deux côtés, il est possible d'établir une relation entre les valeurs identifiées et les conductivités thermiques réelles, au prix cependant d'un étalonnage fastidieux qui dépend notamment de la géométrie du système et des propriétés physiques du matériau à caractériser. Cette solution ne peut donc pas être envisagée pour une approche systématique.

En revanche, il est possible d'utiliser la méthode vue au Chapitre 2 et la précision du moule que l'on a constatée au Chapitre 3 pour mesurer la conductivité longitudinale. Il suffit pour cela de placer les fibres verticalement dans le moule, soit par un dispositif de compaction, soit en fabriquant une pièce normalement et en découpant des morceaux de largeur égales pour les disposer verticalement dans le moule. On peut ainsi déterminer avec précision la conductivité thermique longitudinale du composite, tout au moins pour un composite cuit dans le deuxième cas.

## **CHAPITRE 5**

### **PROCÉDURE EXPÉRIMENTALE DE MESURE DE CONDUCTIVITÉ THERMIQUE TRANSVERSE**

Les simulations menées dans les chapitres précédents ont permis de déterminer un design précis pour le moule destiné aux mesures de conductivités. Nous allons détailler son fonctionnement dans ce chapitre, qui présente la procédure expérimentale complète pour la détermination des conductivités thermiques d'un matériau composite.

Le moule et ses composants sont tout d'abord présentés, ainsi que l'instrumentation dont on dispose pour les expériences. Les problèmes rencontrés lors de la mise en service du moule et des premières injections, ainsi que des solutions pratiques, sont ensuite exposés. Enfin la procédure expérimentale de caractérisation des conductivités thermique d'un matériau composite est détaillée et des résultats expérimentaux sont donnés.

#### **5.1 Présentation du moule et du système d'injection**

##### **5.1.1 Eléments du moule**

Le moule est composé de trois éléments principaux en aluminium : un cadre, une plaque supérieure et une plaque inférieure (Figure 5.1). Le cadre délimite la cavité, dont les dimensions sont de 10 X 30 cm comme l'a indiqué le chapitre 3. Il contient une rainure autour du cadre dans lequel on insère un joint de caoutchouc permettant l'étanchéité (Figure 5.2) entre le cadre et la plaque supérieure.

La plaque inférieure est liée au cadre par les vis de réglage de l'épaisseur de la cavité et dispose aussi d'une rainure sur le côté pour assurer l'étanchéité. Il convient de

s'assurer du placement correct de celui-ci, car il peut être difficile d'insérer la plaque inférieure dans le cadre, notamment en cas de préchauffage séparé des plaques, cas qui sera toutefois évité en général (on préférera préchauffer le moule et le renfort à la même température). La plaque supérieure se fixe au cadre par des attaches mécaniques, non représentées sur les deux figures. Il est possible de la dissocier complètement du reste du moule, pour faciliter la manipulation avant le cycle de chauffage.

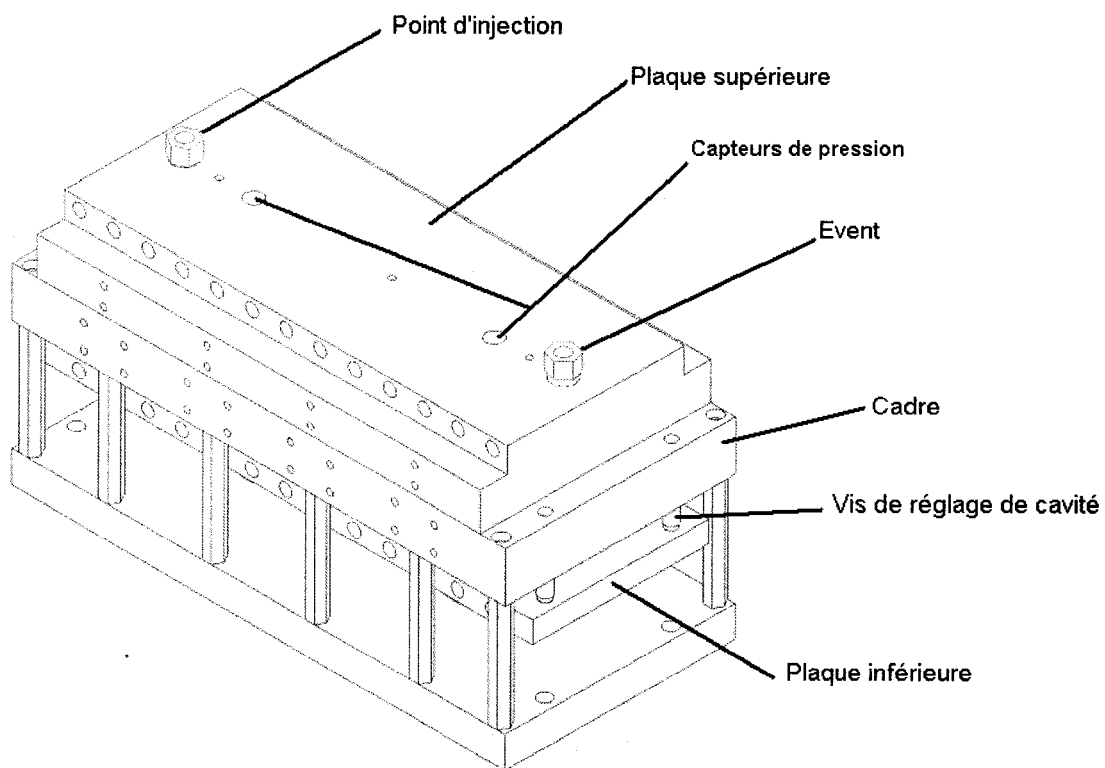


Figure 5.1 : Schéma du moule fermé.

Dans le cas des expériences menées pour la mesure de conductivité thermique, et dans le cas plus général d'expérience faisant intervenir un chauffage, un joint en silicone d'une épaisseur d'un centimètre est ajouté entre la préforme et le cadre (Figure 5.5, « Silicone joint »). Ce joint est différent du joint de caoutchouc : il assure l'isolation thermique du matériau à caractériser vis-à-vis du cadre en aluminium, beaucoup plus conducteur. Enfin, le moule est entouré d'un isolant pour limiter les pertes thermiques.



La différence de température entre l'intérieur et l'extérieur lors d'une mesure de conductivité étant de l'ordre de  $170^{\circ}\text{C}$ , on doit s'assurer que les pertes de chaleur sont les plus proches possible de zéro.

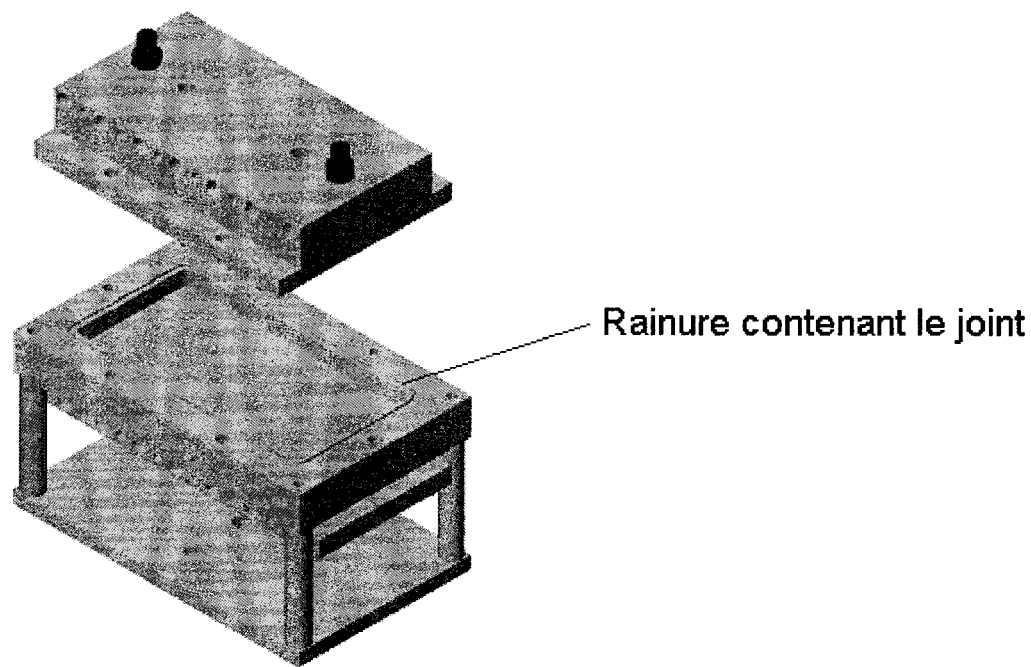


Figure 5.2 : Schéma du moule ouvert.

### 5.1.2 Contrôle de l'épaisseur de la cavité

On doit pouvoir déterminer les conductivités thermiques pour différents taux de fibres dans des travaux futurs de validation de modèles par exemple. On souhaite aussi utiliser le moule pour d'autres applications que la mesure de conductivité. Aussi l'épaisseur de la cavité est-elle variable. Elle est commandée pour l'instant manuellement par les vis de réglage (Figure 5.1). La précision nécessaire est vérifiée au moyen d'un indicateur d'épaisseur dont on place le support sur le cadre (Figure 5.3). On mesure ainsi la profondeur de la cavité à ses quatre coins. Malheureusement l'ajustement

manuel est laborieux à cause du joint présent autour de la plaque inférieure. Les vis de réglage ont été étudiées pour permettre l'ajout d'un système de fermeture et de contrôle de l'épaisseur automatisé. Des possibilités comme une vis mécanique activée par un moteur électrique, un système pneumatique, ou encore un piston hydraulique avec contrôle de la pression et du déplacement sont envisagées.

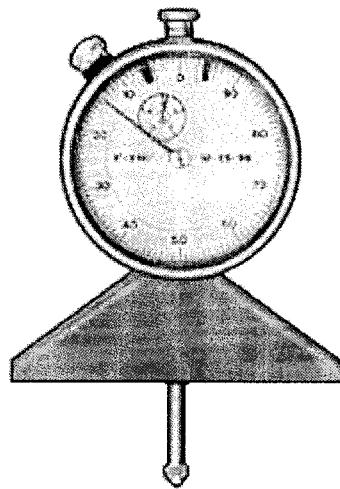


Figure 5.3 : Indicateur analogique d'épaisseur.

### 5.1.3 Système d'injection

On dispose d'un pot de pression de faible volume (~1 litre) dans lequel on place le pot d'injection avec la résine. Afin de faciliter l'injection, on préchauffe la résine pour abaisser sa viscosité. Le pot de pression est relié au réseau d'air comprimé par l'intermédiaire d'un détendeur équipé d'un manomètre, l'air comprimé servant à pousser la résine pour l'injection. Le moule et le pot d'injection sont reliés entre eux par des tuyaux en silicone. Le point d'injection et l'évent sont constitués d'une vis qui permet de les refermer dès que l'injection est terminée (Figure 5.4). Sur la face intérieure de la plaque supérieure, les trous débouchent sur une encoche qui permet une répartition de la résine sur la largeur et donc un remplissage plus uniforme et unidirectionnel.

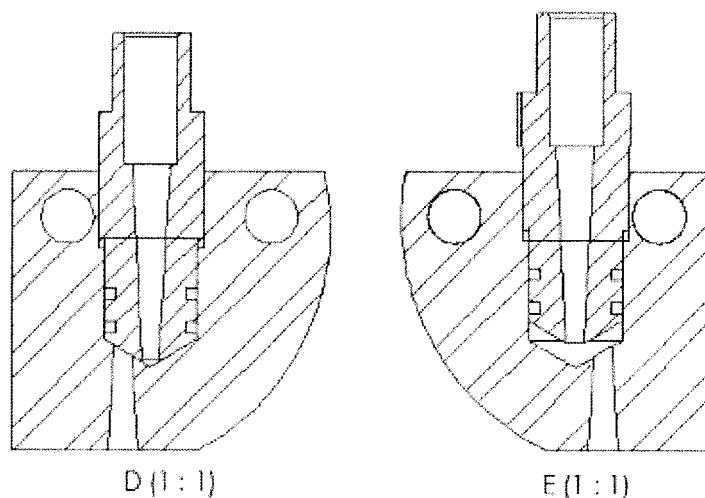


Figure 5.4 : Évent (ou point d'injection) respectivement fermé et ouvert.

#### 5.1.4 Chauffage transverse

Lors de la mesure de conductivité transverse, on a besoin d'effectuer un chauffage uniforme sur les plaques supérieure et inférieure. Afin de réduire les temps d'expérimentation, un système de refroidissement est aussi prévu. Le choix s'est porté sur des éléments chauffants tubulaires placés tout le long du moule (Figure 5.5). Les éléments chauffants alternent avec les circuits de refroidissement par air comprimé. Comme on l'a vu au chapitre 3, ceci permet un chauffage conforme aux conditions des expériences menées.

La puissance nécessaire pour obtenir des pentes de chauffage de  $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$  est de 2650W. Compte-tenu de pertes minimales de 10%, les cartouches choisies sont de 350W chacune. Six cartouches sont disposées dans chaque plaque, portant la puissance totale à 4200W. Les cycles de chauffage sont entièrement programmables grâce à un système de contrôle Davis Controls (contrôleurs CAL 9500P programmables et lecteurs CAL3300) et au logiciel CALgrafix qui permet de communiquer avec les contrôleurs par une

interface graphique sur ordinateur. Les cartouches chauffantes sont regroupées par deux afin de contrôler la température dans six zones de la cavité (trois par côté). Cette possibilité n'est pas utilisée pour les mesures de conductivité thermique transverse.

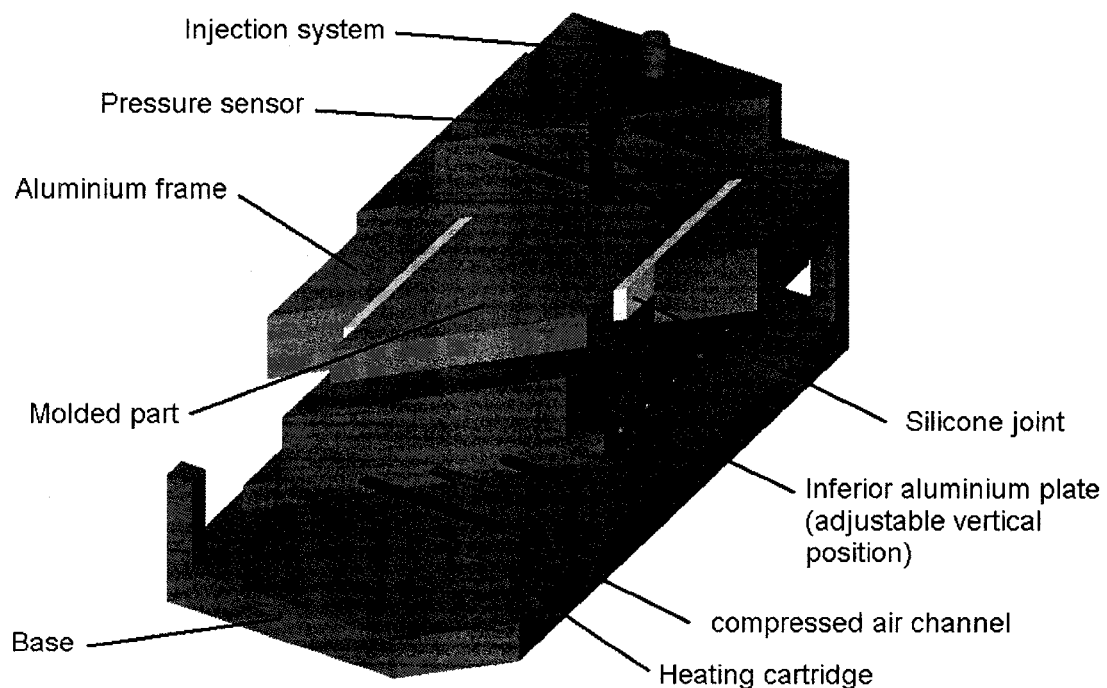


Figure 5.5 : Coupe du moule en configuration transverse.

## 5.2 Instrumentation du moule

### 5.2.1 Thermocouples

Des thermocouples de type K (chromel-alumel) de 50 à 80  $\mu\text{m}$  de diamètre, avec une gaine de téflon, ont été choisis pour l'identification. Les thermocouples sont glissés entre les plis du renfort afin d'être maintenus dans la position voulue. Pour éviter les erreurs de mesure, il est nécessaire que les fils des thermocouples soient placés dans les isothermes, c'est à dire perpendiculairement au flux de chaleur. Dans le cas de la mesure

de conductivité transverse, on les insère donc par le côté du moule. Un trou a été pratiqué dans une des largeurs du cadre afin d'y insérer les thermocouples. Ce trou est de faible diamètre afin de limiter les risques de fuites si le joint d'étanchéité connaissait un problème lors d'une injection. Un tel joint (Figure 5.5, « Silicone joint ») a donc été fabriqué en conséquence : il est composé de plusieurs couches afin d'obtenir une épaisseur réglable mais aussi de faire passer les fils entre deux couches et de les comprimer pour assurer l'étanchéité. Une encoche a été prévue au voisinage du trou pour éviter de plier les fils. Pour le contrôle de température, six thermocouples de type J sont reliés au système Davis Controls, chacun correspondant à une zone indépendante comme décrit en 5.1.4.

Les fils des thermocouples sont reliés à des connecteurs spécifiques de type K. Pour une manipulation plus facile, on essaie de fabriquer des thermocouples d'une longueur inférieure à un mètre. Ceci permet de les placer correctement et de manipuler facilement les connecteurs numérotés une fois le moule fermé.

### **5.2.2 Capteurs de pression**

Cinq capteurs de pression sont placés dans le moule pour suivre l'évolution de la pression interne durant l'injection. Deux sont situés sur la plaque supérieure, et deux vis-à-vis de ceux-ci dans la plaque inférieure. Ceci permettra de placer des capteurs de flux thermique pour d'autres expériences. Le dernier capteur de pression mesure la pression d'injection dans le moule (Figure 5.1). Au moment de cette étude, les capteurs de pression n'étant pas encore disponibles, des thermocouples de même dimension les remplacent; ceux-ci sont non fonctionnels dans le cadre de cette étude.

### 5.2.3 Acquisition des données

L'acquisition des températures se fait avec le logiciel Labview. Le programme disponible permet d'identifier jusqu'à 7 thermocouples, ce qui permettra de mener des expériences plus précises pour la mesure de conductivité longitudinale. Le programme est réglé pour identifier les températures à partir de signaux électriques suivant l'échelle des thermocouples de type K. Le boîtier d'acquisition utilisé est un *NI SCXI-1000* (*National Instruments*).

Pour l'acquisition concernant la caractérisation de la conductivité, on cherche à avoir des relevés de température le plus précis possible. On étalonne donc les thermocouples utilisés avant chaque expérience. L'un d'eux est pris comme référence car c'est la différence de température est importante. On effectue des mesures avec tous les thermocouples placés au même endroit dans un four réglé successivement à plusieurs températures données. On note alors la différence de température rapportée par les thermocouples, qui sera ensuite utilisée pour modifier les relevés de température expérimentaux avant identification de la conductivité thermique. Cette méthode permet aussi de repérer un thermocouple éventuellement défectueux.

### 5.3 Mise en service du moule et problèmes rencontrés

Les premières expériences réalisées ont eu pour but de régler le dispositif et de déceler d'éventuels problèmes. Des plaques de faible épaisseur ont tout d'abord été injectées afin notamment de vérifier l'étanchéité de l'ensemble; avec un mat *Nico 758*. D'autres expériences spécifiques aux problèmes rencontrés ont ensuite été menées afin de trouver une procédure permettant une mesure fiable de la conductivité thermique transverse.

### 5.3.1 Système de chauffage

Le système de chauffage disponible présente plusieurs anomalies par rapport au cas idéal étudié au chapitre 3. Ces problèmes ont été traités de manière à minimiser la perte de précision par rapport au chauffage optimal théorique. Des expériences de chauffage du moule à vide ont été nécessaires au rassemblement de données qui ont permis d'aboutir aux solutions présentées.

Le premier problème est un défaut de montage des cartouches de chauffage. Au lieu d'avoir 6 cartouches dans chaque plateau du moule, le plateau supérieur a été équipé de 7 cartouches, soit le maximum possible 13 canaux étant disponibles, et l'on doit alterner cartouche chauffante et canal de refroidissement). Ceci a été fait dans le but d'augmenter la puissance de chauffage dans le plateau supérieur, étant donné sa masse plus importante que celle du plateau inférieur. Malheureusement, un tel montage n'est pas symétrique et le chauffage par zones implique que les cartouches situées dans la zone centrale ne disposent que de 66% de la puissance que reçoivent les autres cartouches (3 cartouches se partagent la puissance prévue pour 2 dans les autres zones). Ceci engendre un retard de chauffage dans la zone centrale par rapport aux côtés, mais uniquement dans le plateau supérieur. La Figure 5.6 illustre ce retard avec les courbes des thermocouples de contrôle situés proches de la surface intérieure du moule, alors que le chauffage est programmé pour effectuer une rampe.

On constate aussi sur cette figure une forte oscillation de la température dans les autres zones. Dans ce cas-ci, la zone qui manque de puissance chauffe le plus possible, mais les autres zones doivent être limitées par une programmation manuelle. Le système disponible est de type « tout ou rien ». On ne peut donc pas imposer un certain pourcentage de puissance car on ne dispose pas de PID (contrôleur de puissance). La rampe de chauffage est donc régulée par une bande de tolérance. La différence entre le point de chauffage théorique (une rampe dans le temps) et la température réelle mesurée

par le thermocouple de contrôle est calculée par chaque contrôleur CAL9500. Quand cette différence dépasse un certain seuil, le point de chauffage visé « gèle » jusqu'à ce que la différence repasse sous ce seuil. Le chauffage est donc saccadé, ce qui provoque les oscillations constatées. Plus le seuil est important, plus on constate d'oscillations, mais on ne peut pas non plus trop diminuer ce seuil. Sur la Figure 5.6, le seuil est réglé à 5°C. Plusieurs expériences menées avec des seuils de 1°C et 2°C ont conduit à un arrêt du chauffage pour certaines zones, la température mesurée s'éloignant trop de la valeur voulue dès la première oscillation, à cause du temps de réponse des contrôleurs (initialement les contrôleurs chauffent pendant plusieurs secondes et dépassent plus largement la valeur voulue que par la suite du chauffage, comme on peut le voir sur la Figure 5.6).

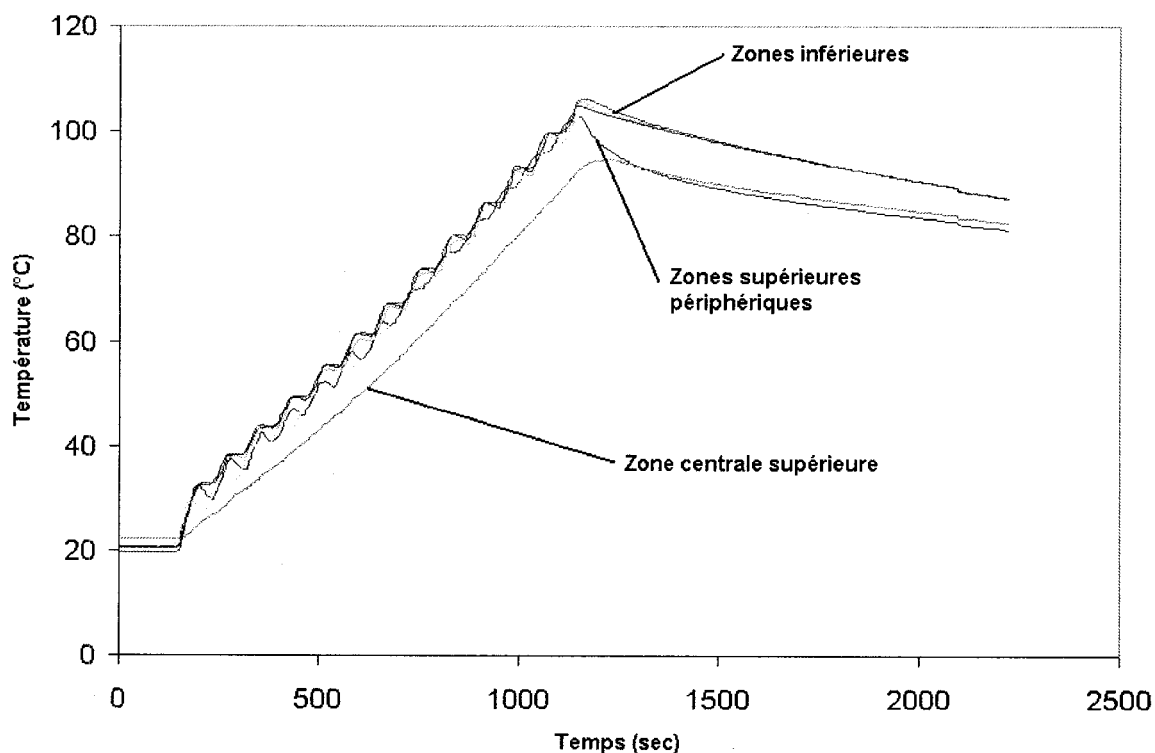


Figure 5.6 : Problèmes rencontrés avec le système de chauffage lors d'un chauffage en rampe.



Ces deux problèmes ont été résolus en appliquant une programmation similaire à une rampe de chauffage. Toutefois, il a été constaté qu'il est plus efficace du point de vue de la répartition du chauffage dans le plateau supérieur de programmer plusieurs rampes d'affilée (une par minute) avec une pente de  $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$  ainsi qu'une bande de tolérance de  $5^{\circ}\text{C}$ . On arrive de cette manière à minimiser la différence de température entre le centre et les côtés du plateau supérieur, et à diminuer les oscillations significativement.

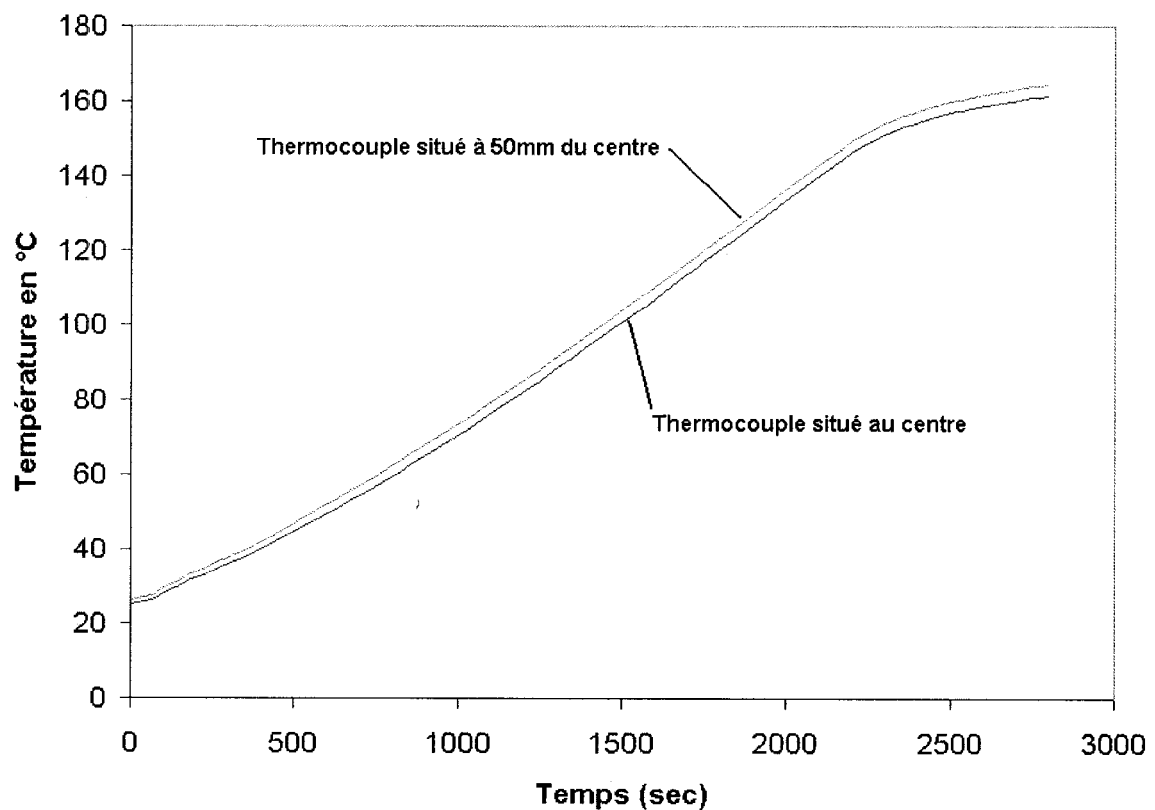


Figure 5.7 : Températures relevées au centre et à 50 mm du centre du moule, à environ 1mm de la surface du moule, à l'intérieur de la pièce moulée.

Dans le cas de la mesure de la conductivité thermique, on regarde si les transferts thermiques à l'intérieur de la pièce ne sont pas trop perturbés. Des expériences ont été menées avec des thermocouples placés dans une pièce composite et dans des fibres

seules, à proximité de la surface du moule. La faible conductivité du composite et du verre par rapport à celle de l'aluminium permet d'atténuer fortement voire complètement les oscillations, comme on peut le voir sur la Figure 5.7. On peut de plus constater sur cette figure que la différence entre des thermocouples situés au centre et à 50 mm du centre du moule est bien moindre que la différence enregistrée en surface du moule, de l'ordre de 3°C au maximum. La précision reste satisfaisante en ce qui concerne la caractérisation de la conductivité thermique transverse d'un composite. Ceci représente toutefois une erreur conséquente par rapport à la précision qu'il est théoriquement possible d'obtenir avec un tel dispositif, et qui serait nécessaire pour effectuer des travaux de validation de modèles.

### 5.3.2 Injection

Le dispositif expérimental a été sujet à quelques problèmes récurrents dans le procédé RTM concernant l'injection de la résine. D'autres problèmes sont dus à l'épaisseur des pièces réalisées qui est elle peu courante.

Des fuites dues au manque de pression de fermeture du moule ont tout d'abord été constatées. Le système de fermeture est composé d'attaches manuelles fixées sur le moule à travers la couche d'isolant. L'isolant est moins rigide que l'aluminium qui compose le moule, et dispose d'un coefficient d'expansion thermique plus faible. Des fissures se créent donc après plusieurs utilisations, et il est nécessaire de resserrer les vis des attaches afin de conserver une pression de fermeture suffisante. D'autres fuites ont été causées par la sortie de sa rainure du joint situé entre le plateau supérieur et le cadre du moule (voir Figure 5.2). Le problème a été réglé en fabriquant un autre joint un peu plus grand.

Dans le cas de pièces épaisses, plusieurs précautions sont à prendre afin d'éviter des risques supplémentaires de fuites. Tout d'abord, il faut laisser un espace sans fibre prenant toute la largeur du moule à l'intérieur de la cavité du côté de l'injection. La

résine peut ainsi ensuite s'écouler en suivant les fibres et imprégner toute la pièce. Dans le cas contraire, les perméabilités étant différentes, la résine suit un chemin préférentiel qui l'empêche d'imprégner le bas du renfort. Il est aussi important de laisser s'écouler la résine jusqu'à disparition des bulles d'air à l'évent. Contrairement à une pièce mince, les premières gouttes de résines arrivent alors que tout l'air n'a pas été chassé du renfort. L'injection peut alors durer assez longtemps, même pour un moule de faibles dimensions. Dans le cas particulier de ce moule, le joint de silicone est divisé en plusieurs parties qui permettent de compresser les fils de thermocouples entrant par le côté du moule et assurer ainsi l'étanchéité à cet endroit. Une fuite a été constatée lors d'une expérience où ce joint n'avait pas été suffisamment compressé. Ceci peut être facilement réglé en diminuant l'épaisseur de cavité. Il est à noter que les épaisseurs possibles sont pour l'instant limitées à cause du faible nombre de ces joints qui sont disponibles. De plus le joint d'épaisseur la plus petite est assez fragile et se brise à chaque expérience. Il est donc nécessaire de le recoller avant chaque injection.

## **5.4 Protocole expérimental**

Dans cette partie sont décrites en détails les différentes étapes réalisées lors d'une expérience destinée à la mesure de conductivité thermique. Une attention particulière est accordée à la préparation des matériaux, dépendamment du type d'expérience à réaliser (détermination de la conductivité du composite cru ou cuit). Le protocole complet dans le cas du composite cuit est ensuite décrit en détails.

### **5.4.1 Préparation des matériaux et du moule**

Un gabarit a été utilisé pour découper le joint interne à la cavité du moule. Il est préférable de découper le renfort de manière à laisser un centimètre de vide dans le sens

de la longueur par rapport à ce gabarit. Deux millimètres en moins en largeur permettent aussi d'éviter de plier les fibres en frottant sur le joint lors de la mise en place, ce qui pourrait résulter en des irrégularités au niveau du taux de fibres local. Le renfort utilisé ici est un tissu de fibres de verre unidirectionnelles et provient de la compagnie JB Martin. Il est maintenu pendant l'injection par le joint de silicone sur les côtés et par la pression de fermeture du moule dans la direction transverse aux fibres.

Le moule et ses composants (système d'injection, évent) doivent être enduits d'agent démoulant avant chaque utilisation. La mise en service initiale comprend deux couches d'agent scellant et cinq couches d'agent démoulant *Frekote*. Les joints reçoivent le même traitement afin d'aider au démoulage de la pièce et au nettoyage du moule et de ses composants. On monte ensuite tous les composants sur le moule et on ajuste la cavité comme indiqué au paragraphe 5.1.2.

Les thermocouples de type K sont fabriqués à l'aide d'une soudeuse spécifique pour les fils de faibles diamètres. Ils sont ensuite démontés pour pouvoir être insérés dans le trou pratiqué dans le cadre du moule sans les détériorer. Ils sont placés en premier, juste avant le joint interne de silicone. On pose ensuite les couches de fibres en insérant les thermocouples aux épaisseurs voulues avant de refermer le moule en vérifiant que le joint séparant le cadre et le plateau supérieur est bien resté dans sa rainure.

La résine polyester utilisée ici (*AOC cryptic T-590*) doit être préchauffée à 40°C pour diminuer sa viscosité et faciliter l'injection. Le moule doit donc lui aussi être préchauffé à 40°C ainsi que les fibres. Pour la résine on utilise un bain thermostaté *Brookfield TC200*. Même si la résine ne commence à polymériser qu'aux alentours de 80°C, on préférera la préchauffer sans catalyseur et faire le mélange juste avant l'injection, directement dans le pot de pression. Celui-ci est aussi préchauffé dans un four. Le catalyseur utilisé est du *Norox Pulcat-A*, en quantité de 1.5% en masse, que l'on dose à l'aide d'une balance électronique. La résine est dégazée à l'aide d'une pompe à vide juste avant d'être injectée.

#### **5.4.2 Injection et cuisson de la résine**

On utilise un pot de pression pour injecter la résine et on ne fait pas le vide dans la cavité. Dans les expériences réalisées l'écoulement n'a pas été étudié en détails. La pression choisie est de 15 psi. Dans le cas des pièces épaisses, il faut attendre que tout l'air soit chassé de la cavité avant de refermer l'évent et le point d'injection. Quand un flot continu de résine sort de l'évent, les tuyaux de silicone à l'entrée et à la sortie sont comprimés à l'aide d'une pince et on peut alors visser l'évent et le point d'injection comme indiqué au paragraphe 5.1.3.

La cuisson peut alors être effectuée. Pour mesurer la conductivité thermique du composite cuit, la cuisson doit être totale et on peut choisir de prolonger le temps de cuisson théorique pour appliquer une post-cuisson. Dans le cas où l'on veut effectuer des mesures pendant la cuisson ou avant réticulation (pour la conductivité thermique du composite cru par exemple), on se référera à la caractérisation cinétique de la résine.

### 5.4.3 Nettoyage

Le nettoyage du moule et des autres composants de l'appareil expérimental est important car il permet de conserver de bonnes conditions d'expérimentation. Le pot de pression doit être nettoyé immédiatement après l'injection pour éviter toute polymérisation dans les tuyaux. On utilise pour cela de l'acétone usagée que l'on fait circuler sous pression dans les canaux du pot. Les parties accessibles du pot de pression sont nettoyées avec de l'acétone propre.

Après démoulage de la pièce, le moule doit être nettoyé avec un nettoyant pour moule à polyester (*Dexter PMC : Polyester Mold Cleaner*). En effet l'agent démoulant qui a été appliqué de manière permanente est un polymère, et l'acétone aurait un effet dissolvant sur celui-ci. Les événements comportent des filets, la résine polymérisée à l'intérieur doit donc être chassée à la perceuse si on ne peut pas l'enlever facilement. On nettoie ensuite les filets à l'aide d'un taraud.

Les surplus de résine doivent être polymérisés. Les résines polyester présentent un danger d'incendie. On ne doit donc pas les chauffer dans un four pour forcer la polymérisation, mais plutôt y mélanger un nouveau catalyseur et un accélérateur. Dans le cas de la résine AOC cryptic T-590, on utilise du cobalt à 12% et du Trigonox. La polymérisation se fait alors à température ambiante. Il est préférable de réaliser cette opération dans plusieurs petits contenants si la quantité de résine à polymériser est importante.

#### 5.4.4 Exploitation des résultats

Les relevés de température obtenus avec le logiciel *Labview* sont finalement utilisés avec le programme *transconductv.exe* (utilisé pour identifier la conductivité thermique transverse, voir Annexe IV) pour déterminer les conductivités thermiques. Celle de la préforme se détermine indépendamment des autres. En revanche, on détermine la conductivité du composite cru et cuit et on en déduit grâce aux modèles présentés dans le chapitre 2 la conductivité de la résine en fonction de la température et du degré de cuisson. On utilise ensuite la modélisation présentée pour la conductivité en fonction du taux de fibres pour obtenir un résultat final modélisant la conductivité thermique en fonction du taux de fibres, de la température et du degré de cuisson.

Pour obtenir les données relatives au matériau composite et la position des thermocouples, on découpe la plaque réalisée au moyen d'une scie électrique en plusieurs endroits. Une partie sert à effectuer une pyrolyse pour déterminer le taux massique de fibres. On peut aussi mesurer la masse volumique globale du composite. Enfin, on utilise un scanner d'images pour prendre une « photo » de la tranche du composite avec les thermocouples. On mesure ensuite à l'aide d'un logiciel d'imagerie les distances entre les thermocouples.

### 5.5 Résultats expérimentaux

Les expériences menées ont permis de déterminer la conductivité thermique du matériau composite cuit. La Figure 5.8 représente les données recueillies par les trois thermocouples lors du cycle de chauffage du composite cuit. Les deux thermocouples situés aux extrémités de la pièce n'enregistrent pas la même température car ils sont situés à des distances différentes de la surface du moule.

Ces relevés de température ont ensuite été utilisés avec le programme d'identification de la conductivité thermique par méthode inverse, et les résultats de la Figure 5.9 ont été obtenus. Une régression linéaire a été réalisée sur ces résultats, et la conductivité du matériau composite cuit, pour un taux massique de fibres de 66%, vérifie approximativement la relation :

$$\lambda(T) = 10^{-4}T + 0.31 \quad (W / m.K) \text{ avec } T \text{ en } K$$

En considérant la conductivité thermique des fibres égale à celle du verre (1W/mK) et en utilisant les équations 2.3 à 2.7, on peut déterminer la conductivité thermique de la résine polyester employée dans ces expériences (voir aussi Figure 5.10):

$$\lambda(T) = 8 * 10^{-5}T + 0.14 \quad (W / m.K) \text{ avec } T \text{ en } K$$

Ce calcul est toutefois approximatif car la présence de liant dans les fibres n'a pas été prise en compte, tout comme la présence de bulles d'air. Les régressions linéaires ont été calculées afin de comparer les résultats obtenus avec ceux de Sobotka [18] Cependant on constate que les coefficients de corrélation de ces régressions ne sont pas satisfaisant, bien que l'écart maximal entre les points calculés et la courbe soit de 3% pour le composite cuit et de 3.8% pour la résine cuite, ce qui est une meilleure précision que

celle obtenue par Sobotka. Même si les transferts de chaleur ne sont toujours pas parfaits, la précision de la mesure de température est meilleure que lors de ses expériences : les fluctuations de température étaient d'environ  $0.3^{\circ}\text{C}$  contre  $2^{\circ}\text{C}$  pour les expériences de Sobotka. De plus il avait constaté des écarts de plus de  $10^{\circ}\text{C}$  sur le même plateau de chauffage, avec une pièce de plus faible dimension. En comparaison, les résultats obtenus ici ont donc une meilleure précision, même si elle est encore améliorable.

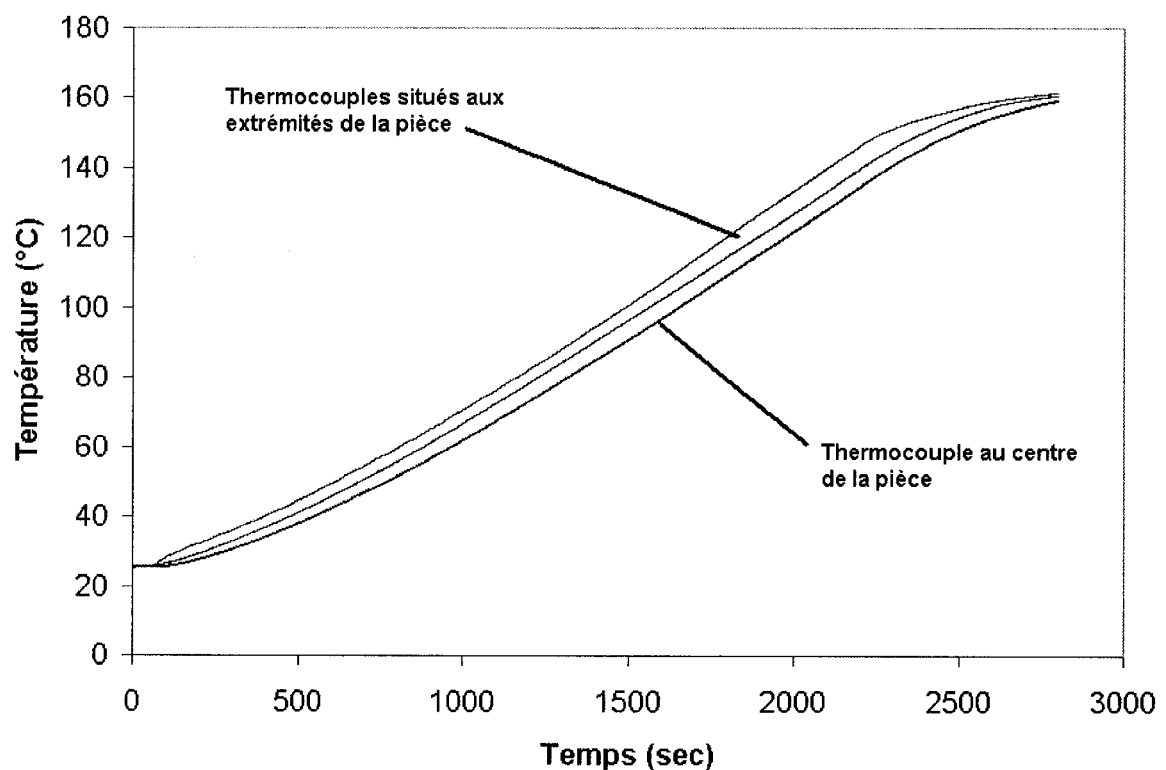


Figure 5.8 : Évolution de la température au sein de la pièce pendant le cycle de chauffage.

En ce qui concerne le matériau composite cru, il a été constaté lors des périodes de cuisson avec une rampe de chauffage que la réaction chimique perturbe trop rapidement le système pour obtenir une mesure de la conductivité thermique fiable. On ne pourrait en effet identifier la conductivité du composite que pour des températures



inférieures à celle d'utilisation, ce qui ne présente pas d'intérêt. Il est donc préférable d'utiliser un nouveau protocole expérimental dans lequel on injecte de la résine sans catalyseur afin d'éviter que la réaction chimique ne démarre. Une fois l'expérience effectuée, on injecte de la résine catalysée et on repousse la résine non catalysée, que l'on polymérise de la même manière qu'en 5.4.2. De cette façon il est possible d'avoir une mesure plus précise et sur une plage de température bien plus grande.

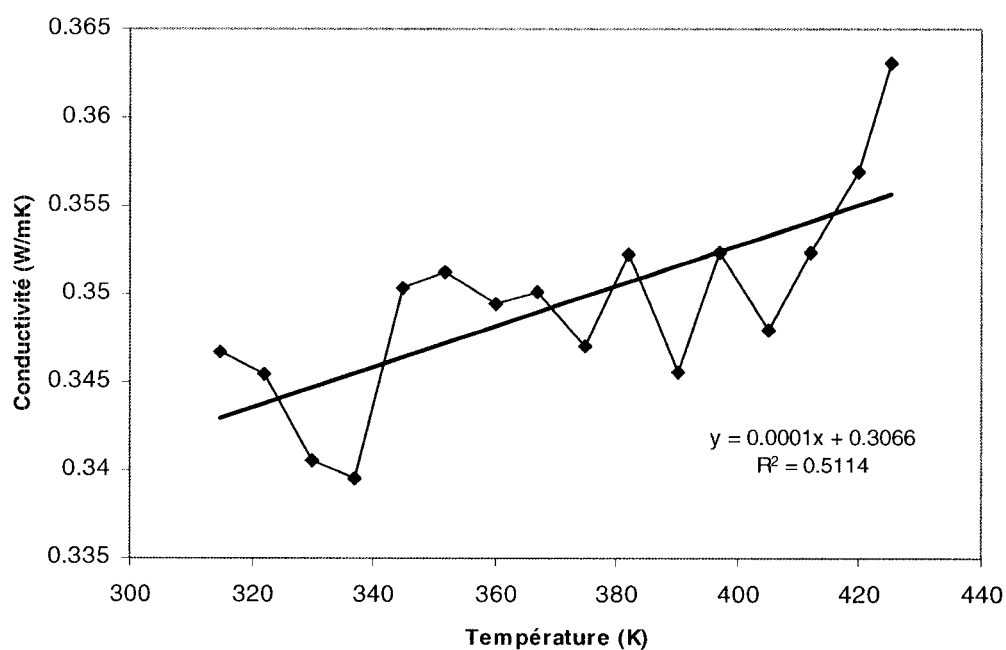


Figure 5.9 : Conductivité thermique transverse du composite cuit en fonction de la température.

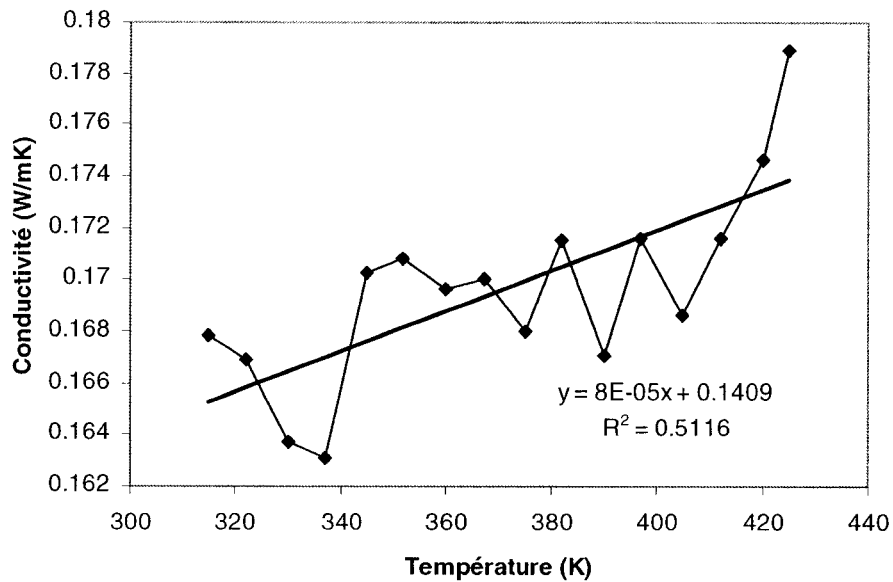


Figure 5.10 : Conductivité thermique de la résine cuite calculée à partir de la conductivité du composite cuit.

## 5.6 Conclusion

Le protocole expérimental développé permet de caractériser la conductivité thermique transverse d'un matériau composite. Des problèmes dus à l'assemblage et au système de chauffage ont fait que les modèles théoriques étudiés dans les chapitres précédents ne reproduisent pas exactement la réalité. On s'est toutefois rapproché le plus possible du cas idéal avec le matériel disponible et il a été possible d'obtenir des résultats expérimentaux avec un renfort unidirectionnel, et on a pu en déduire la conductivité thermique de la résine cuite. Le protocole expérimental a été exposé dans les détails avec les matériaux étudiés, et on a constaté que pour mesurer la conductivité d'un matériau composite avec résine crüe, il est préférable d'injecter de la résine sans catalyseur afin d'étudier un plus grand intervalles de températures d'utilisation.

Pour améliorer encore le dispositif expérimental, plusieurs solutions peuvent être envisagées. En ce qui concerne la mesure de conductivité thermique transverse, les oscillations dues au système de chauffage ne semblent pas un problème. En revanche la différence de puissance disponible dans les cartouches du plateau supérieur cause une déformation des isothermes par rapport au cas idéal, et par conséquent une perte de précision. On pourrait donc remplacer de nouvelles cartouches de chauffage afin d'avoir un ensemble symétrique. Toutefois le plateau supérieur possède une masse importante par rapport au plateau inférieur, et plus de cartouches chauffantes pourrait être un avantage dans des applications futures. En rajoutant des contrôleurs de puissance (PID) aux contrôleurs CAL, il serait possible non seulement d'uniformiser le chauffage dans le plateau supérieur, mais aussi de stopper les oscillations de température en surface interne du moule.

## CONCLUSION

Cette étude a porté sur la validation d'un appareil expérimental de mesure de la conductivité thermique transverse d'un matériau composite. La connaissance de ce paramètre est très utile dans le cadre de l'étude du fini de surface notamment, mais aussi pour l'optimisation des cycles de cuisson.

Une première étape consistait à déterminer, dans le cadre de la méthode de détermination de la conductivité thermique transverse choisie, les dimensions nécessaires pour que le moule permette une mesure précise de ce paramètre. Une première conception permettait d'effectuer ces mesures, mais de nouvelles contraintes, prenant notamment en compte les travaux futurs, imposaient de modifier la conception du moule. Une analyse prenant en compte la géométrie du moule et du système de chauffage, les coefficients de convection, les éléments perturbateurs comme les capteurs de pression insérés dans le moule a été menée afin de vérifier l'unidirectionnalité des transferts de chaleur, qui est nécessaire à la bonne précision d'une mesure de conductivité thermique. La géométrie finalement retenue répondait parfaitement à ces exigences. L'adéquation du dispositif a été vérifiée avec des simulations tridimensionnelles apportant un couplage des perturbations et avec une identification virtuelle de conductivité thermique à travers l'épaisseur à l'aide du logiciel LCMFlot. La précision obtenue (en calculant l'écart entre la conductivité imposée au départ et la conductivité identifiée par le programme après une simulation de montée en température) lors de ces simulations était excellente (de l'ordre de 1% d'erreur).

Le procédé RTM (Moulage par Transfert de Résine) a des spécificités comme la difficulté de réaliser des pièces très épaisses. Or pour mesurer la conductivité thermique dans le plan des fibres, il faudrait réaliser une pièce environ 10 fois plus haute que large.

La possibilité d'adapter le moule et les outils disponibles pour la mesure de la conductivité transverse a donc été étudiée. Plusieurs possibilités ont été simulées en détail avec LCMFlot afin de déterminer s'il est possible d'obtenir des transferts de chaleur quasi-unidirectionnels dans le plan des fibres en ne modifiant pas trop le moule disponible. Des enveloppes en téflon ou en composite présentaient des solutions possibles. Bien que les simulations montrent que les transferts sont relativement unidirectionnels dans un tel cas, il n'est pas possible d'utiliser les relevés de température issus de telles expériences avec la méthode inverse disponible. La solution est en effet instable la plupart du temps, même si dans certains cas il est possible d'établir une relation entre la conductivité identifiée et la conductivité réelle, malgré les pertes de chaleur. De toutes les solutions envisagées, la plus simple consiste à fabriquer des pièces épaisses dans le moule déjà disponible, en y incrustant des thermocouples, puis à découper ces pièces et les placer à angle droit dans le moule de manière à déterminer la conductivité thermique dans le plan des fibres. Une telle approche est concevable car il est inutile de mesurer la conductivité longitudinale du composite cru. En effet, on peut obtenir la conductivité thermique de la résine crue par une mesure transverse, et parallèlement on peut valider des modèles de conductivité longitudinale avec un composite cuit. Cette méthode a l'avantage de ne nécessiter aucun changement ni ajout de matériel ou de logiciel. Le protocole expérimental n'est pas plus laborieux, contrairement à d'autres changements envisués.

Enfin, le protocole expérimental de mesure de la conductivité transverse d'un matériau composite a été décrit en détails. Il a été constaté que des précautions sont à prendre notamment en ce qui concerne les joints internes pour éviter les fuites de résine durant l'injection. Il faut aussi surveiller la rigidité de l'isolant externe du moule, qui peut causer une baisse de la pression de fermeture du moule. Les problèmes dus au système de chauffage et à la mauvaise disposition des cartouches chauffantes ont été en partie résolus grâce à une programmation fastidieuse des contrôleurs CAL9500. On a ensuite pu constater que pour caractériser précisément une résine crue, il faut l'injecter

sans catalyseur puis l'éjecter avec de la résine catalysée, ce qui est un procédé difficile à réaliser en pratique. Cela semble toutefois être la meilleure solution pour disposer d'informations sur les plages de températures d'utilisation de la résine, mais aussi pour une modélisation plus précise. Un matériau composite formé de résine AOC T-590 et de fibres unidirectionnelles JB Martin a été caractérisé à l'état cuit. On a pu en déduire la conductivité de la résine cuite. Les résultats diffèrent de ceux obtenus par Sobotka [18] sur la même résine, mais la précision semble moins bonne tant pour la lecture de la température que pour les transferts de chaleur. Le moule nouvellement conçu apporte donc une précision supplémentaire par rapport aux outils disponibles auparavant. Le système d'acquisition avec le logiciel Labview apporte la précision et la vitesse nécessaires à de telles expériences.

Cependant, ce moule peut encore être amélioré. En y incluant des contrôleurs de puissance (PID) ou en modifiant la disposition des cartouches chauffantes (en les remettant symétriques comme dans le cas idéal prévu au chapitre 3), il serait possible de rétablir l'unidirectionnalité des transferts de chaleur dans le plateau supérieur et d'apporter un meilleur contrôle des variations de températures dans le temps à la surface du moule. Le remplacement des cartouches chauffantes n'est toutefois pas nécessaire si le contrôle de puissance de chauffage devient disponible, mais il est cependant recommandé afin de bénéficier d'une plus grande vitesse de chauffage, car dans l'état actuel la puissance disponible normalement pour deux cartouches est répartie sur trois ; en changeant la répartition des cartouches on gagnerait environ 50% de puissance de chauffage. L'ajout d'un isolant plus rigide est aussi à l'étude et permettrait de s'affranchir des problèmes de relâchement progressif des attaches qui referment le moule. Enfin, l'ajout d'isolant entre les plateaux supérieur et inférieur devrait permettre de réaliser des études approfondies sur l'influence du gradient de température dans l'épaisseur de la pièce composite.

Pour terminer la mise en service et la validation du moule dans sa future configuration, plusieurs essais sont recommandés : tout d'abord, des essais de montée en température avec un renfort sec dans lequel seront placés quelques thermocouples dans un même plan horizontal, afin de vérifier que les isothermes sont bien horizontaux, à l'image de la Figure 5.7. Puis le moule pourra être définitivement validé avec l'identification de la conductivité thermique d'un matériau solide dont les propriétés thermophysiques sont connues. Le moule devrait alors permettre d'entreprendre la validation de modèles concernant les conductivités transverse et longitudinale de matériaux composite avec des renforts unidirectionnels, tissus ou même mats. Il pourrait être intéressant aussi avec un tel outil de vérifier la loi des mélanges en effectuant une mesure de conductivité pendant la cuisson et en découplant les phénomènes de conduction et de création de chaleur par la réaction chimique exothermique.

## RÉFÉRENCES

- [1] LEBRUN G., GAUVIN R., *Heat Transfer in a Heated Mold during the Impregnation Phase of the Resin Transfer Molding Process*, Journal of Materials Processing & Manufacturing science, vol. 4, oct 1995.
- [2] BAILLEUL J.L., DELAUNAY D., *Experimental and Numerical Analysis of Heat Transfer in Resin Transfer Molding Process*.
- [3] HOJJATI M., HOA S.V., *Models Laws for Curing of Thermosetting Composites*, Journal of composite materials, vol. 29, No 13, 1995.
- [4] GUYONVARCH G., AUDET M., QIAN Y.Y., TROCHU F., DELAUNAY D., *Validation of Non Isothermal Resin Transfer Molding Simulations*.
- [5] LEBRUN G., GAUVIN R., KENDALL K.N., *Experimental Investigation of Resin Temperature and Pressure During Filling and Curing in a Flat Steel RTM Mould*, Composites Part A 27A (1996), 347-355.
- [6] GAO D.M., TROCHU F., GAUVIN R., *Heat Transfer Simulation of Resin Transfer Molding by the Finite Element Method*, Materials and manufacturing Processes, 10(1); 57-64, 1995.
- [7] PITCHUMANI R., YAO S.C., *Evaluation of Transverse Thermal Diffusivity of Unidirectional Fiber-Reinforced Composites*, Int. J. Heat Mass Transfer, vol. 35, No 9, 2185-2194, 1992.



- [8] BAUER T.H., *A General Analytical Approach Toward the Thermal Conductivity of Porous Media*, Int. J. Heat Mass Transfer, vol. 36, No 17, 4181-4191, 1993.
- [9] FUSHENG NI, GU G.Q., CHEN K.M., *Effective Thermal Conductivity of Nonlinear Composite Media With Contact Resistance*, Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 40, No 4, pp943-949, 1997.
- [10] TERVOLA P., *A Method to Determine the Thermal Conductivity From Measured Temperature Profiles*, Int. J. Heat Mass Transfer, vol.32, No 8, pp 1425-1430, 1989.
- [11] KALAPRASAD G., PRADEEP P., MATHEW G., PAVITHRAN C., THOMAS S., *Thermal Conductivity and Thermal Diffusivity Analyses of Low-Density Polyethylene Composites Reinforced With Sisal, Glass and Intimately Mixed Sisal/Glass Fibres*, Composite science and technology 60 (2000) 2967-2977.
- [12] FARMER J. D., COVERT E., *Thermal Conductivity of a Thermosetting Advanced Composite During its Cure*, journal of thermophysics and heat transfer, vol. 10, No 3, july-september 1996.
- [13] TAI H., *Equivalent Thermal Conductivity of Two- and Three- Dimensional Orthogonally Fiber-Reinforced Composites in One-Dimensional Heat Flow*, Journal of composites technology and research, JCTRER, vol. 18, No 3, july 1996, pp 221-227.
- [14] HUANG C.H., HAN J.-Y., *An Inverse Problem in Simultaneously Measuring Temperature-Dependent Thermal Conductivity and Heat Capacity*, Int. J. Heat Mass Transfer, vol. 38 No 18, pp 3433-3441, 1995.

- [15] HUANG C.H., OZISIK M.N., *Direct integration Approach for Simultaneously Estimantg Temperature Dependent Thermal Conductivity and Heat Capacity*, numerical heat transfer, part A, vol. 20, pp 95-110, 1991.
- [16] CHEN H.-T., LIN J.-Y., *Simultaneous Estimations of Temperature-Dependent Thermal Conductivity and Heat Capacity*, Int. J. Heat Mass Transfer, vol. 41, No 14, pp 2237-2244, 1998.
- [17] PRUD'HOMME M., *Optimisation du Problème de Conduction Inverse par le Gradient Conjugué*.
- [18] SOBOTKA V., *Détermination des Paramètres Thermophysiques et Cinétiques d'une Résine Polyester Insaturée*, rapport de stage de fin d'études, Ecole Polytechnique Montréal, sept. 2001.
- [19] SALLA J.M., RAMIS X., *A kinetic Study of Three Catalytic Systems on the Curing of an Unsaturated Polyester Resin*, Journal of applied polymer science, vol 51, 453-462 (1994).
- [20] RAMIS X., SALLA J.M., *Effect of the Initiator Content and Temperature on the Curing of an Unsaturated Polyester Resin*, Journal of polymer science part B polymer physics, vol 37. 751-768 (1999).
- [21] GUYONVARCH G., *Analyse et Optimisation des Transferts Thermiques Couplés Lors du Moulage des Matériaux Composites par Transfert de Résine (procédé RTM). Application à la Pièce Automobile d'Aspect en Polyester / Fibre de Verre*. Thèse de doctorat, Université de Nantes, Isitem, 1995.

- [22] KAMAL M.R., SOUROUR S., *Kinetics and thermal characterization of a thermoset cure*, Polymer engineering and science, vol 13, No 1, 1973.
- [23] BAILLEUL J.L., *Optimisation du Cycle de Cuisson de Pièces en Matériau Composite. Application à un Préimprégné Résine Epoxy / Fibre de Verre*. Thèse de Doctorat, Université de Nantes, Isitem, 1997.
- [24] JARNY Y.C., MAILLET D., *Les Problèmes Inverses et la Métrologie Thermique*, Métrologie thermique et techniques inverses, centre CNRS d'Aussois, vol. 1 : cours.
- [25] DEGIOVANNI A., *Détermination des Propriétés Thermophysiques : Conductivité et Diffusivité*, Métrologie thermique et techniques inverses, centre CNRS d'Aussois, vol. 1 : cours.
- [26] JURKOWSKI T., JARNY Y., DELAUNAY D., *Estimation de la Conductivité Thermique de Thermoplastiques. Un Appareil de Mesure et un Algorithme Inverse*. Métrologie thermique et techniques inverses, centre CNRS d'Aussois, vol. 2 : Ateliers.
- [27] BOHR E., *Etude des Echanges Thermiques dans la Fabrication des Composites par les Procédés d'Injection sur Renfort*, mémoire de maîtrise, Ecole Polytechnique (génie mécanique), jan. 2000.
- [28] LECOINTE D., *Caractérisation et Simulation des Processus de Transferts Lors d'Injection de Résine Pour le Procédé RTM*, thèse de doctorat, Université de Nantes, Isitem, 1999.
- [29] RIOPEL S., *Etude Expérimentale de la Cuisson d'un Composite Unidirectionnel Verre/Polyester de Grande Epaisseur*, mémoire de maîtrise, Ecole Polytechnique de Montréal, 1999.

- [30] YOUSEFI A., LAFLEUR P.G., GAUVIN R., *Kinetic Studies of Thermoset Cure Reactions – a Review* – mémoire de these, Ecole Polytechnique (génie chimique).
- [31] INCROPERA F.P., DE WITT D.P., *Fundamentals of Heat and Mass Transfer*.
- [32] MALLICK P.K., *Fiber-Reinforced Composites, Materials, Manufacturing and Design*, 2<sup>nd</sup> edition, 1993.
- [33] TROCHU F., BOUDREAULT J.-F., GAO D.M., GAUVIN R., *Three-Dimensional Flow Simulations for the Resin Transfer Molding Process*, Materials and manufacturing processes vol. 10, No1, 21-26, 1995.
- [34] TROCHU F., GAUVIN R., GAO D.M., *Numerical Analysis of the Resin Transfer Molding Process by the Finite Element Method*, Advances in Polymer Technology, 12(4): 329-342, 1993.
- [35] FERLAND P., GUITTARD D., TROCHU F., *Concurrent Methods for Permeability Measurement in Resin Transfer Molding*, polymer composites, 17, 1, 149-158, 1996.
- [36] BAILLEUL J.-L., DELAUNAY D., JARNY Y., JURKOWSKI T., *Thermal Conductivity of Unidirectional Reinforced Composite Materials – Experimental Measurement as a Function of State of Cure*, Journal of Reinforced Plastics and Composites, Vol. 20, No. 01/2001.
- [37] JAUFFRES D., *Conception d'une Presse Expérimentale de Moulage de Pièces Composites par le Procédé RTM (Resin Transfer Molding) Dédiée à des Mesures de*

*Conductivité Thermique*, rapport de stage, INSA de LYON, École Polytechnique de Montréal, janvier 2002.

[38] MENGE H., TROCHU F., MILLISCHER A., SOBOTKA V., *An Experimental Device and an Inverse Method to Determine the Thermal Conductivity of a Fiber Reinforced Composite as a Function of Temperature and State of Cure*, 4<sup>ème</sup> Colloque Canada-Japon, Vancouver, 19-21 septembre 2002.

[39] JARNY Y., Cours sur les Méthodes Inverses & Applications en Thermique, août 2002.

[40] LEM K.-W., HAN C. D., *Thermokinetics of Unsaturated Polyester and Vinyl Ester Resins*, Polymer Engineering and Science, Vol. 24, 175-184.

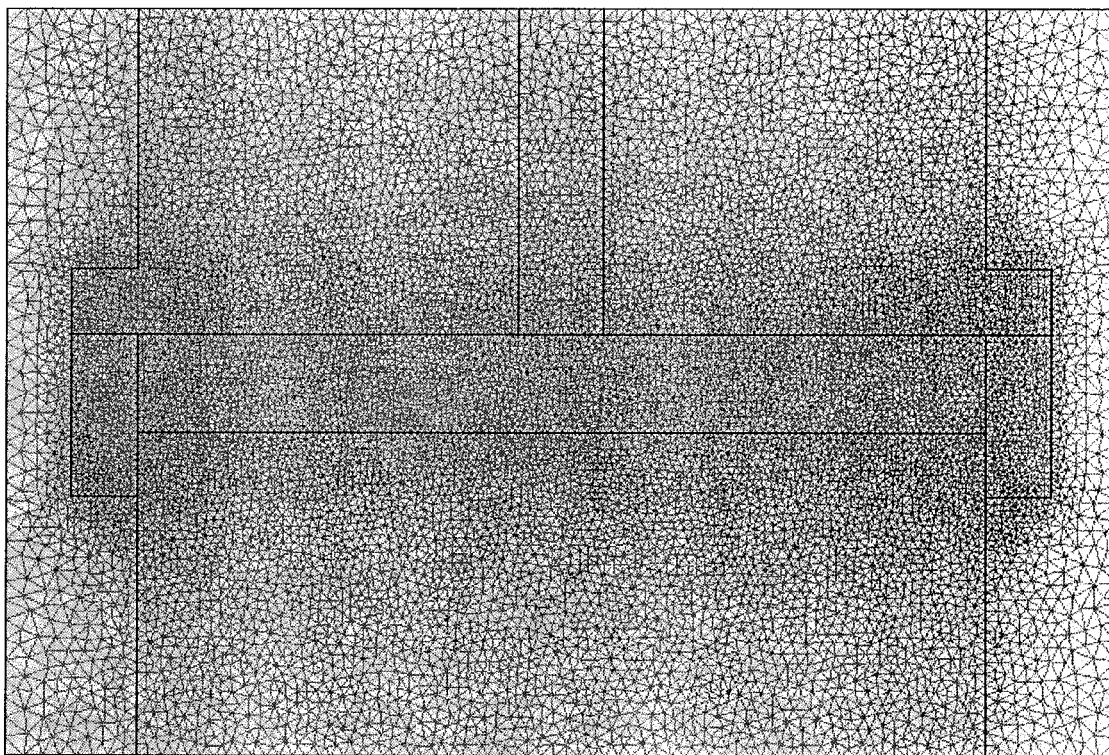
[41] MAZJNEVIC K., Handbook of Thermodynamic Tables and Charts, Hemisphere Publishing Corp.

## ANNEXE I

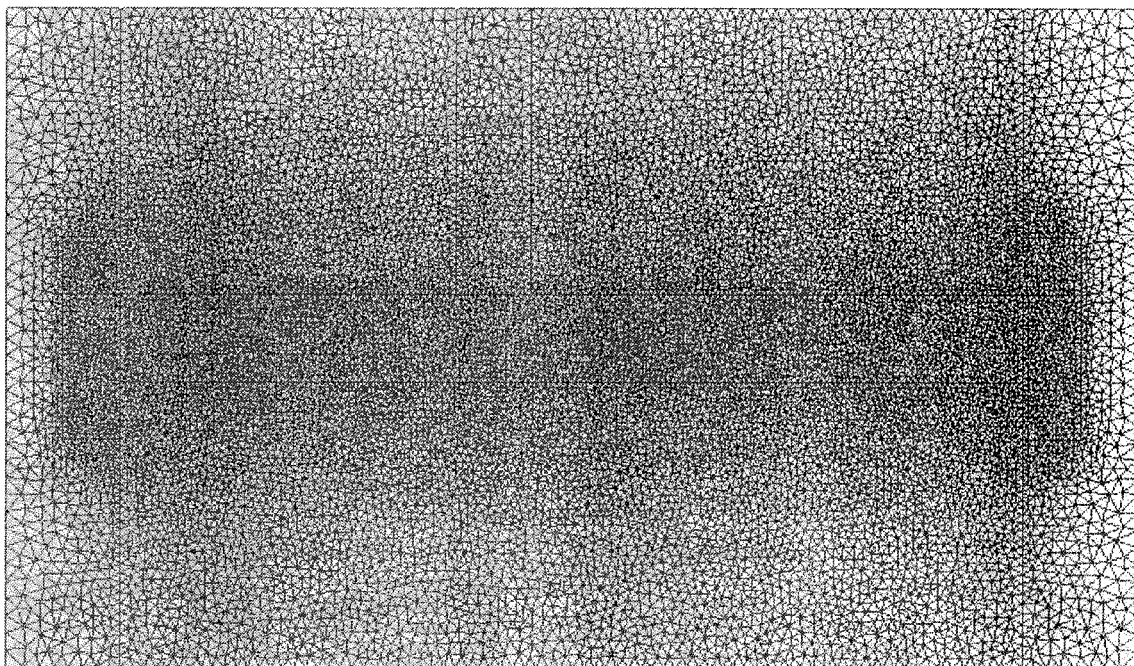
### MAILLAGES

Cette annexe présente les différents maillages bidimensionnels et tridimensionnels utilisés tout au long de cette étude : tout d'abord, les maillages utilisés pour les études initiales de dimensionnement du moule thermique, puis les maillages bidimensionnels modélisant le moule dans ses configurations transverse et longitudinale et enfin le maillage tridimensionnel du moule en configuration transverse.

#### Maillages bidimensionnels



Maillage 1 : Moule de conductivité transverse initial.



Maillage 2 : Moule agrandi de 27.5 mm d'un côté.

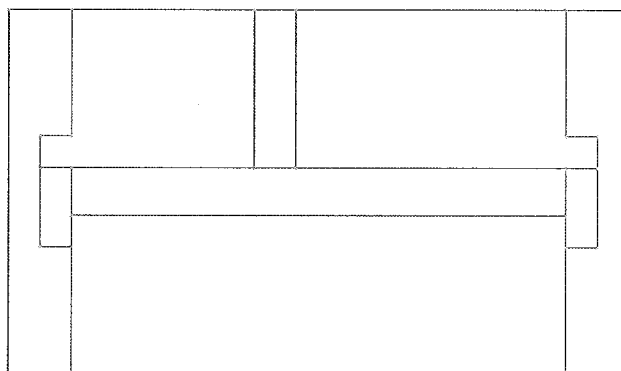
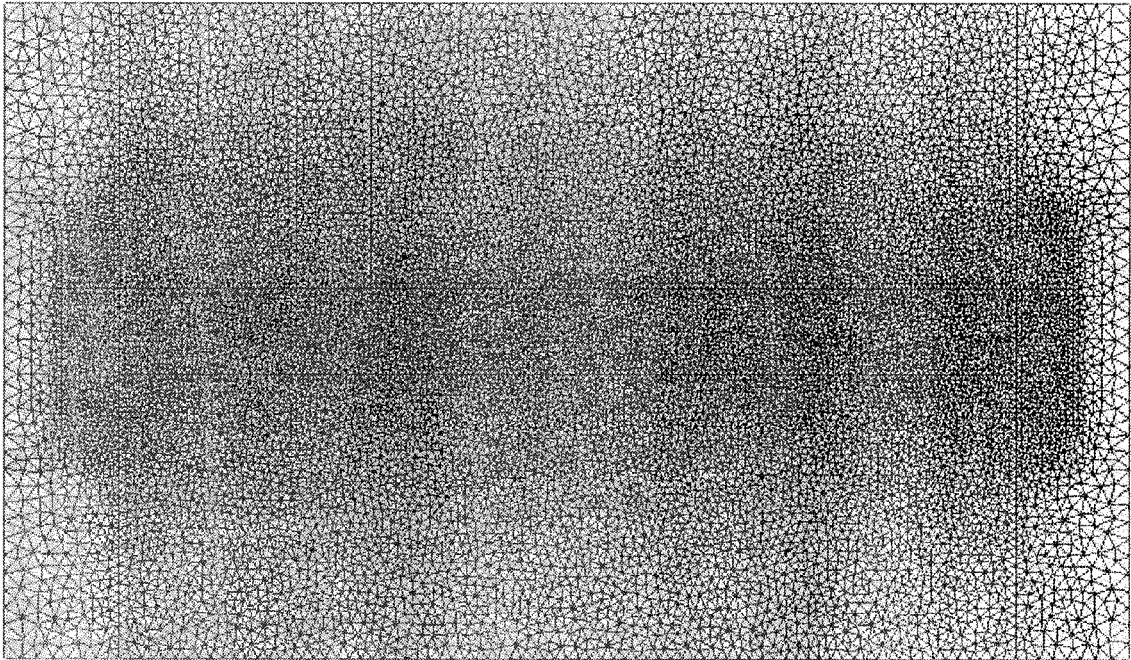


Schéma correspondant.



Maillage 3 : Moule avec capteur de pression décalé.

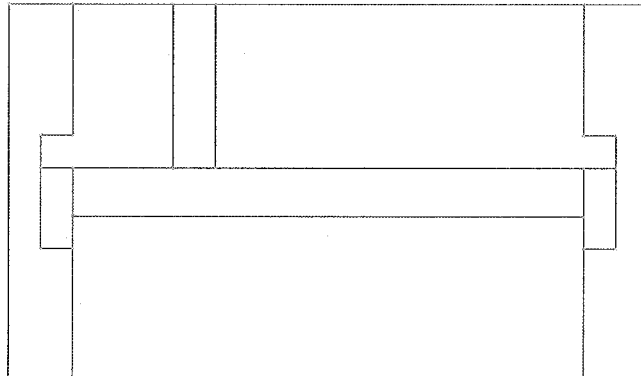
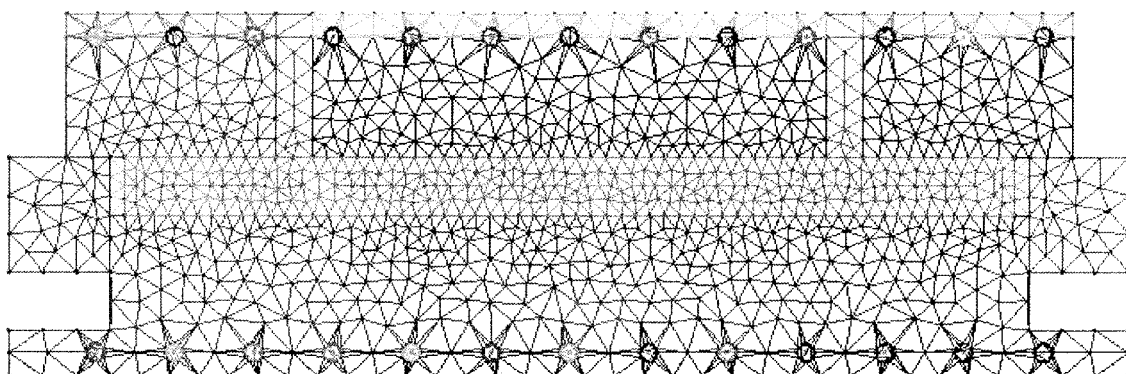
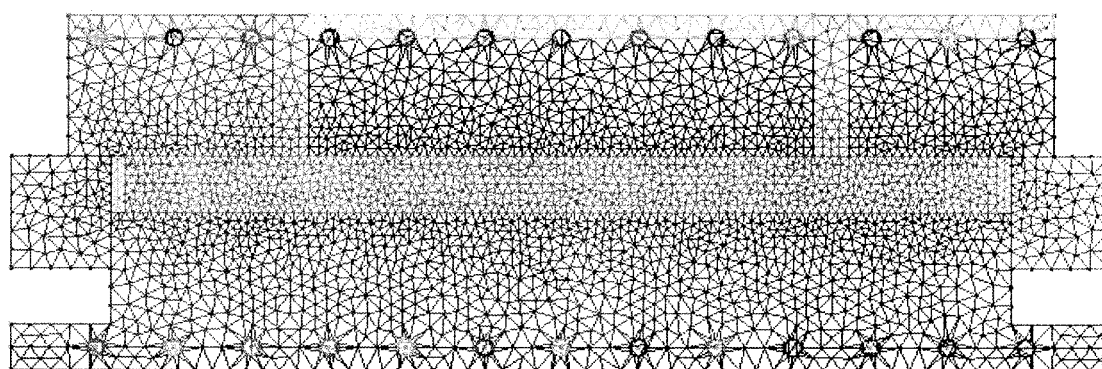


Schéma correspondant.

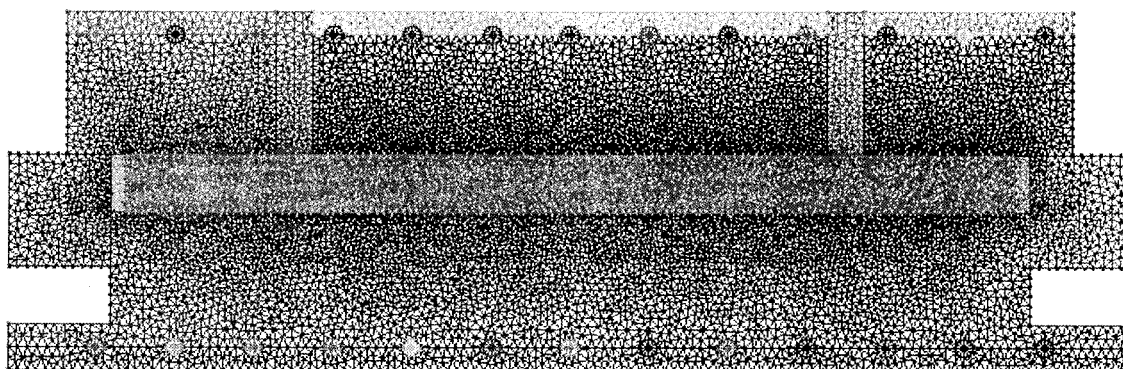




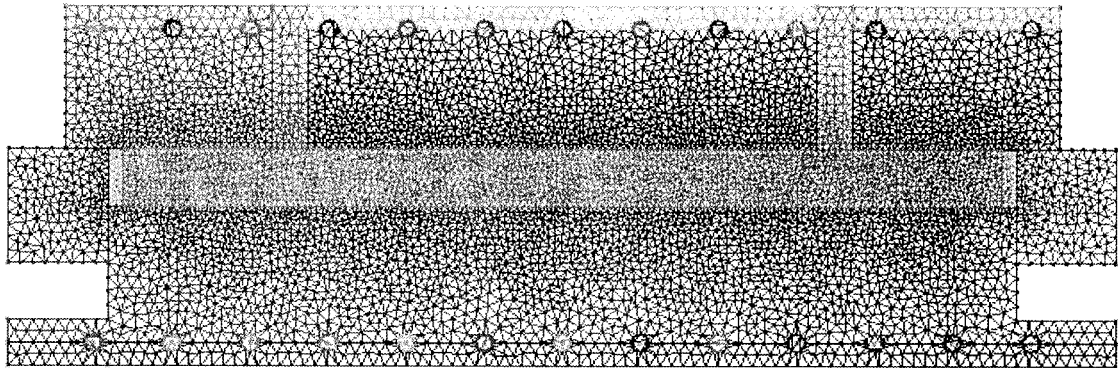
Maillage 4 : Longueur caractéristique 1mm (2487 éléments).



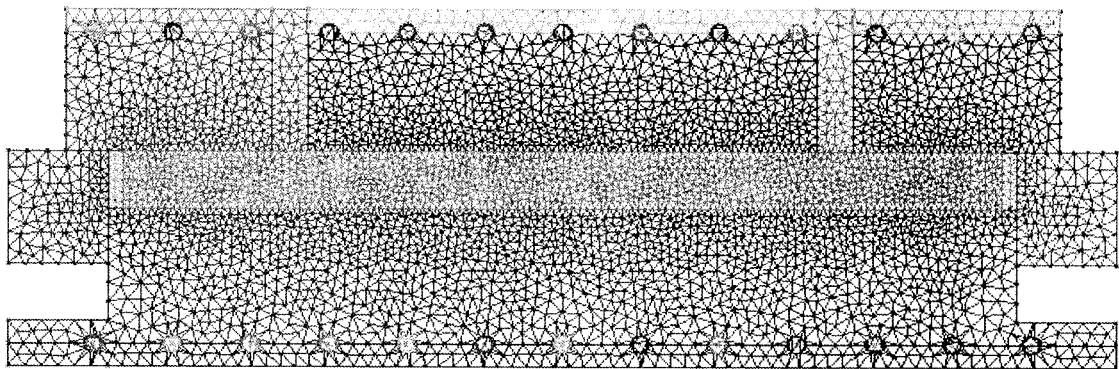
Maillage 5 : Longueur caractéristique 0,6 mm (5766 éléments).



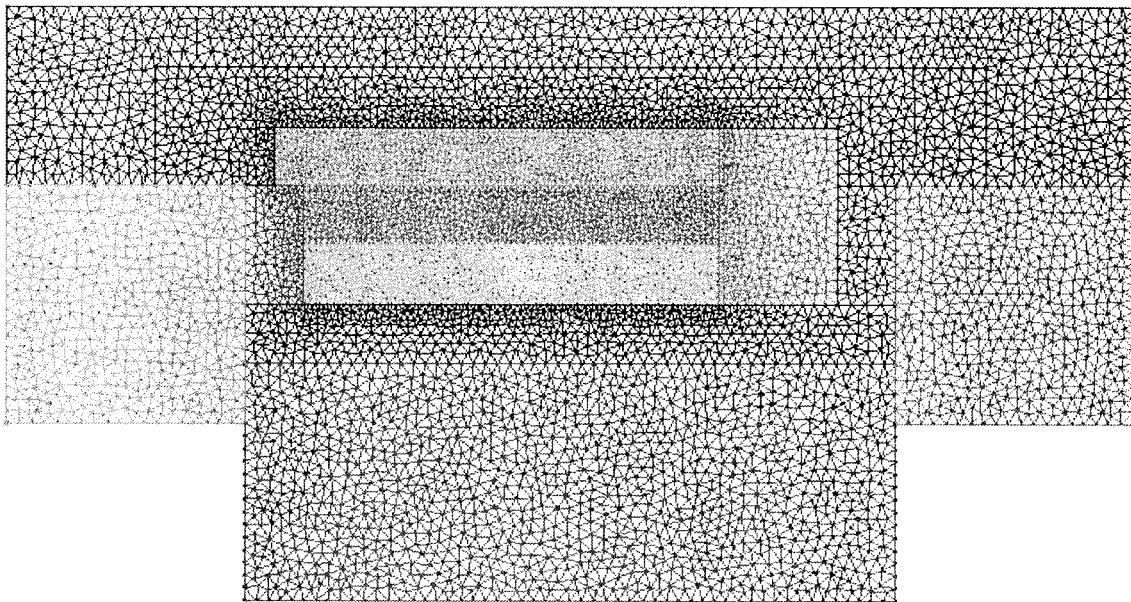
Maillage 6 : Longueur caractéristique 0,3 mm (21859 éléments).



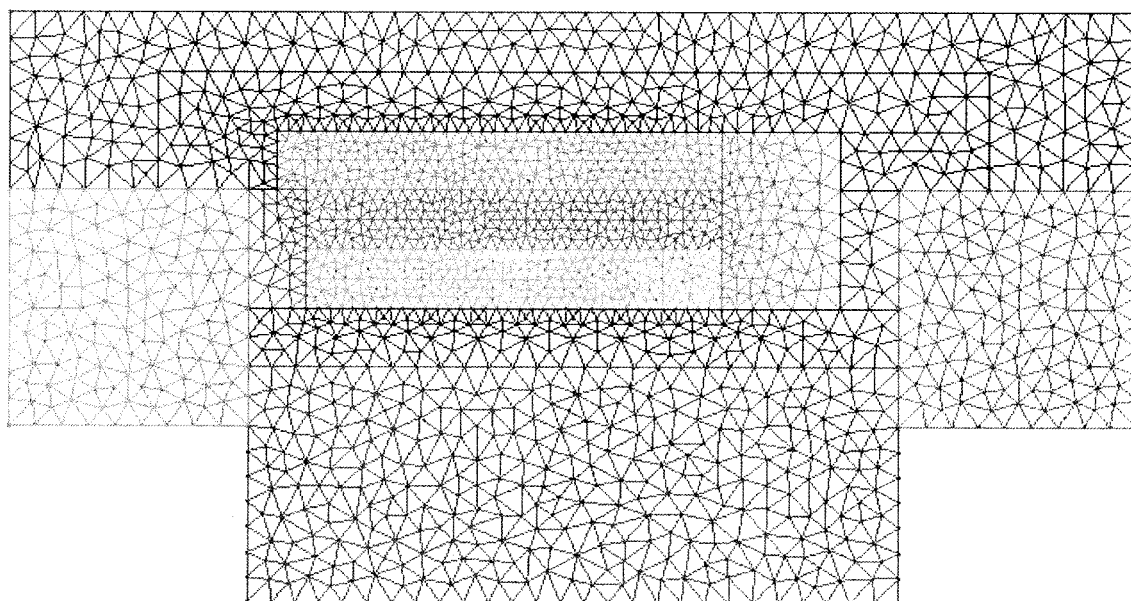
Maillage 7 : Longueur caractéristique 0,4 mm (12527 éléments).



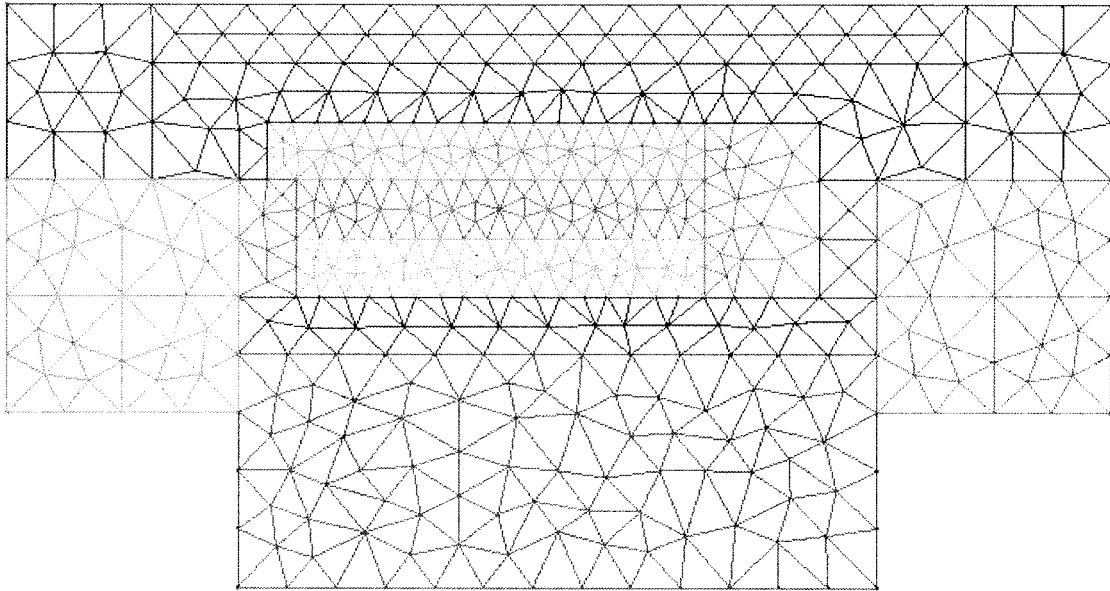
Maillage 8 : Longueur caractéristique 0,5 mm (8277 éléments).



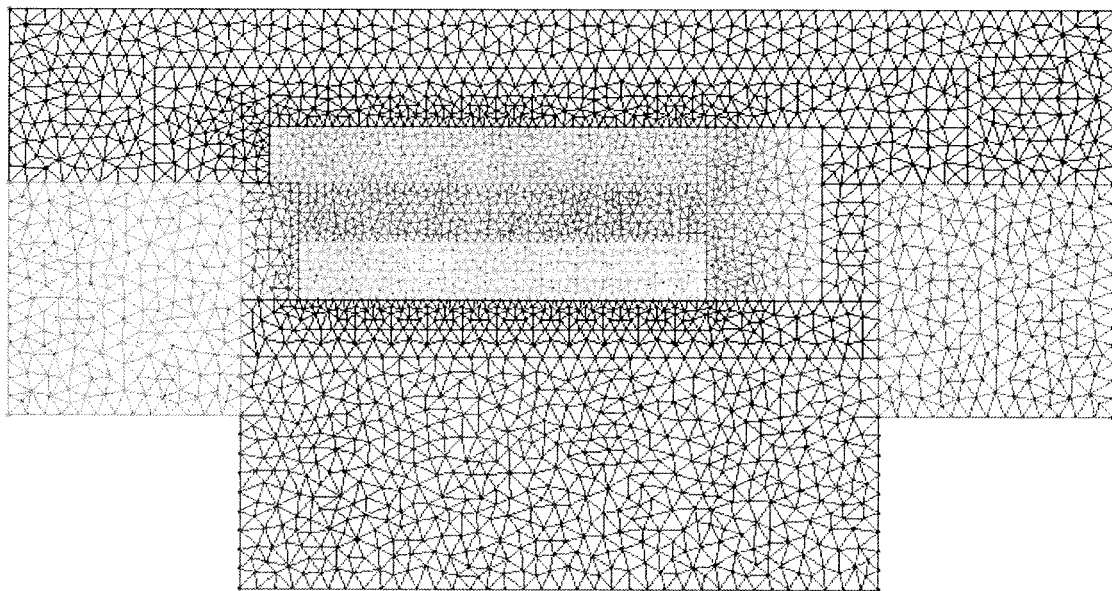
Maillage 9 : Longueur caractéristique 0,2 mm (13327 éléments).



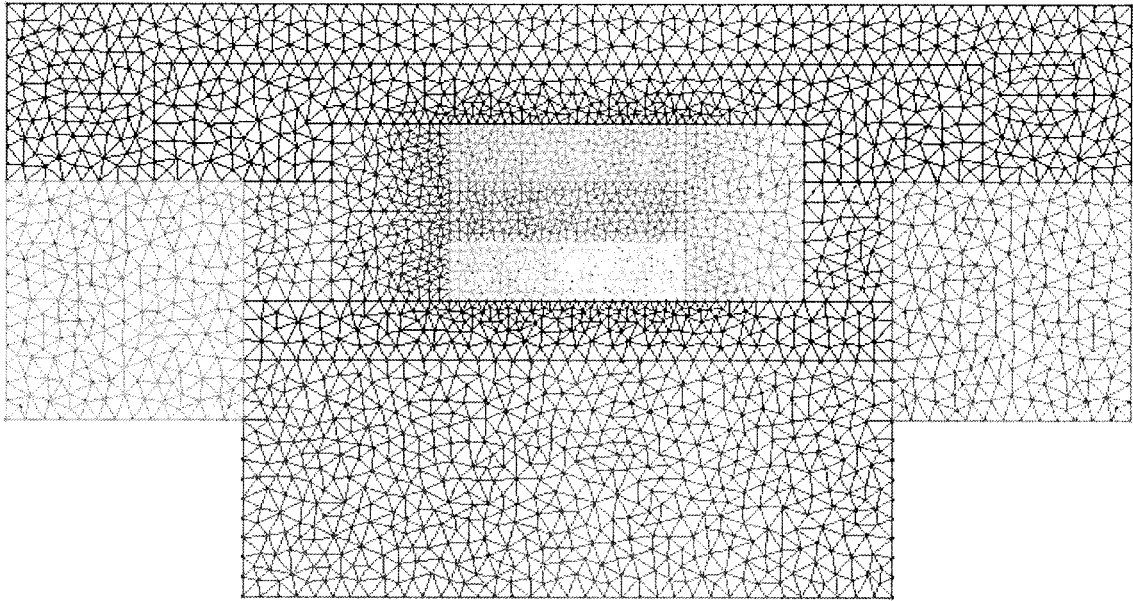
Maillage 10 : Longueur caractéristique 0,4 mm (3530 éléments).



Maillage 11 : Longueur caractéristique 0,8 mm (858 éléments).



Maillage 12 : Longueur caractéristique 0,3 mm (5802 éléments).



Maillage 13 : Longueur caractéristique 0,3 mm (5352 éléments).

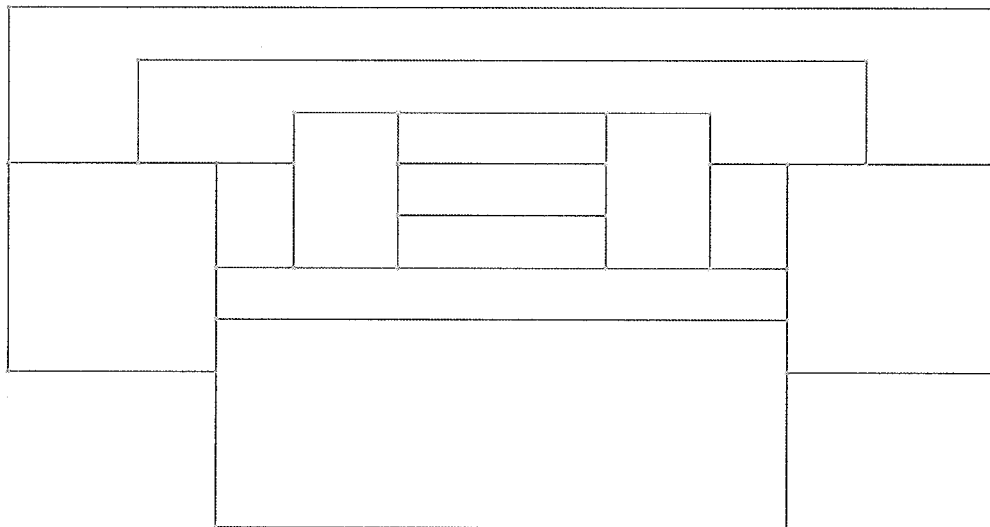
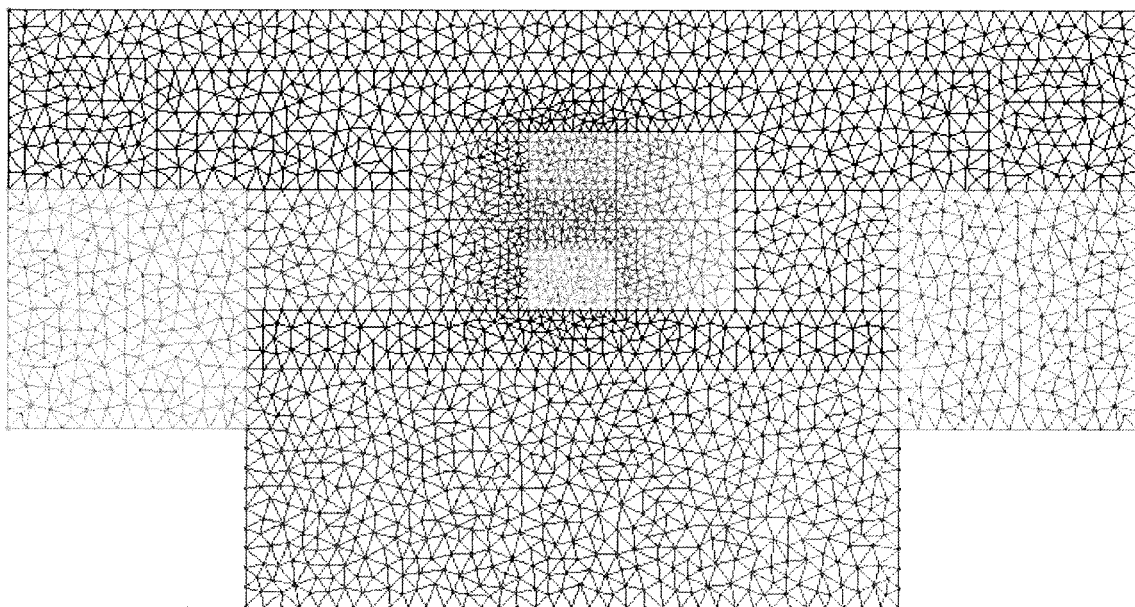


Schéma correspondant.



Maillage 14 : longueur caractéristique 0,3 mm (4480 éléments).

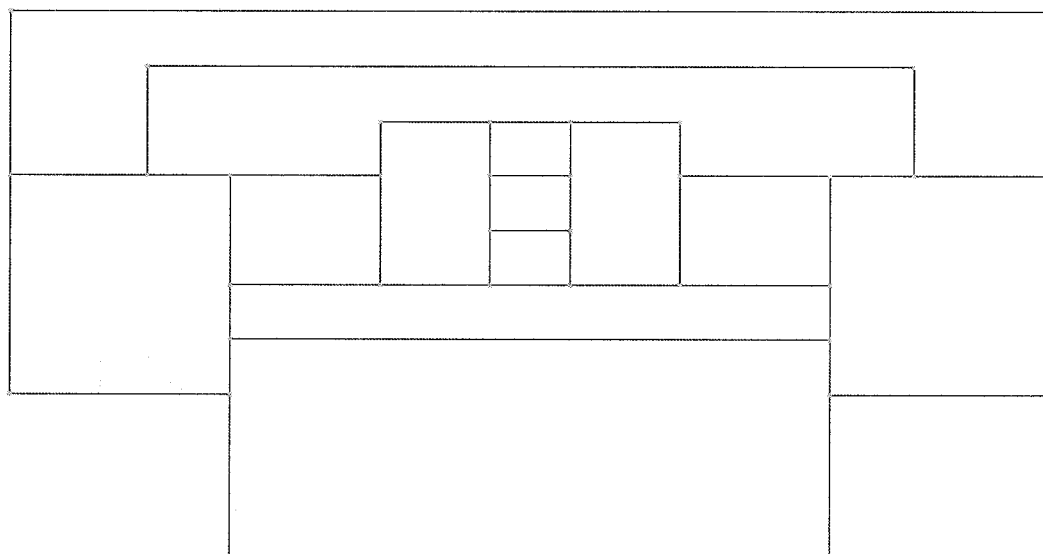
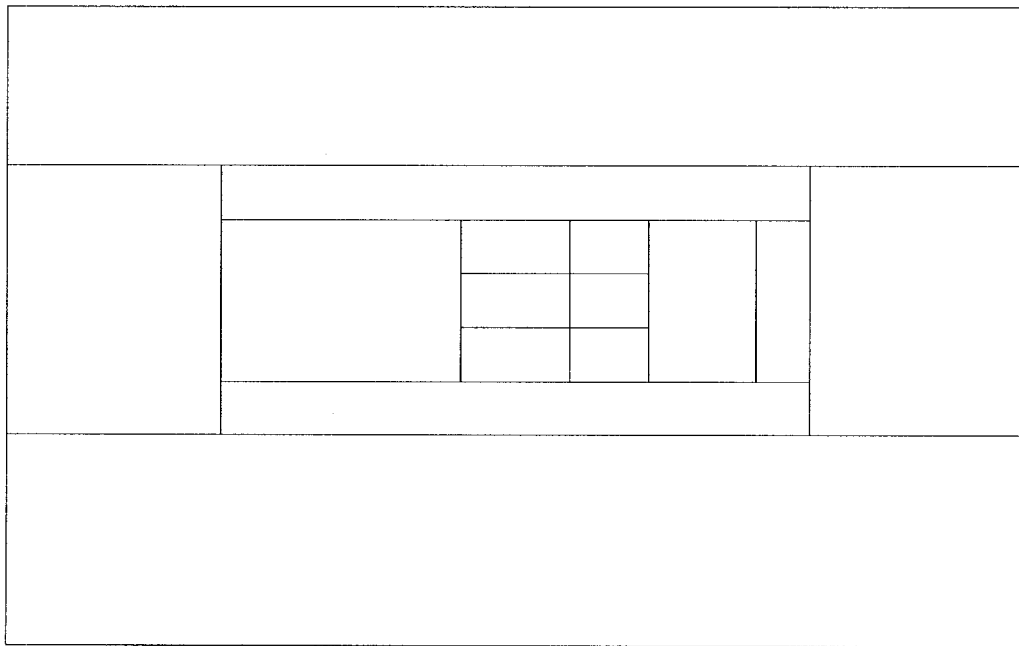
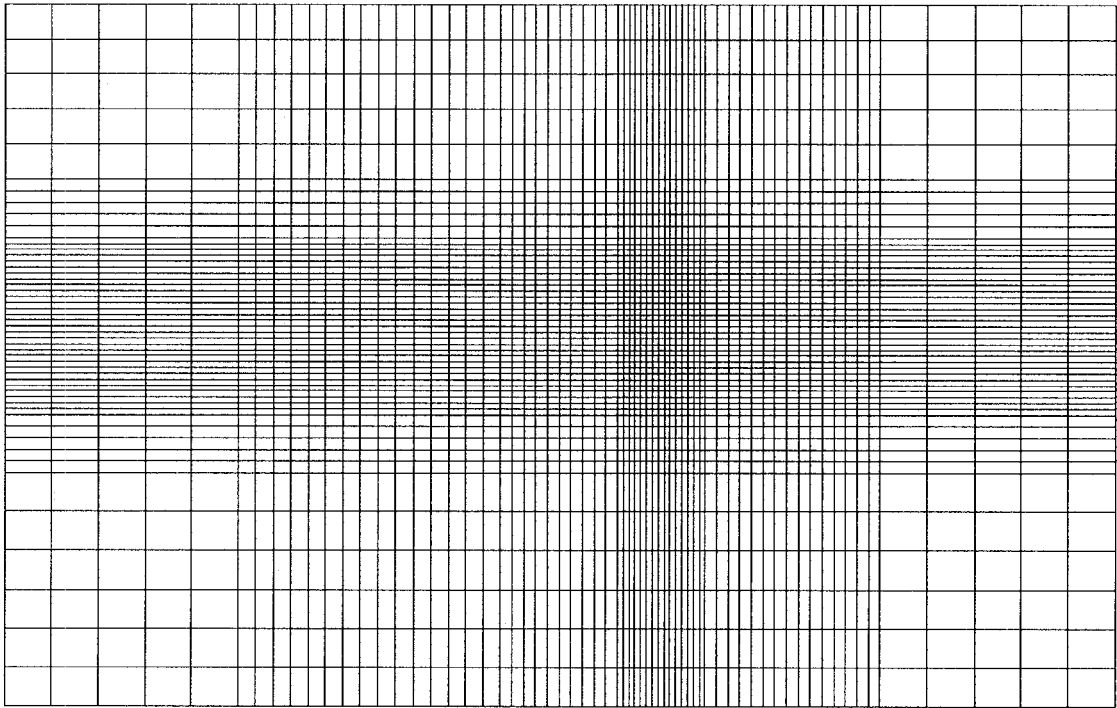


Schéma correspondant.



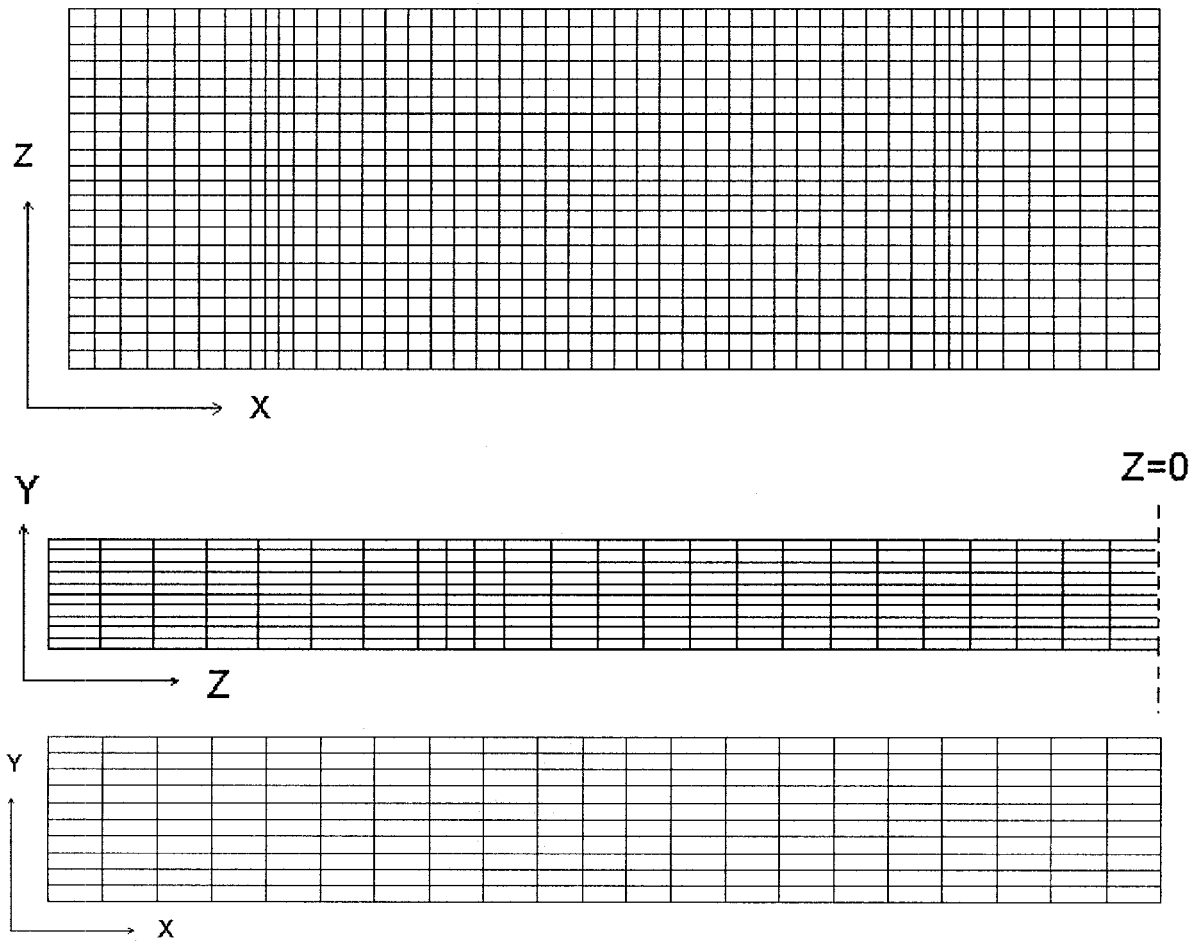
Maillage 15 : Maillage 2D, configuration longitudinale, utilisé pour appliquer la méthode inverse, et schéma des zones disponibles.

## Maillage tridimensionnel

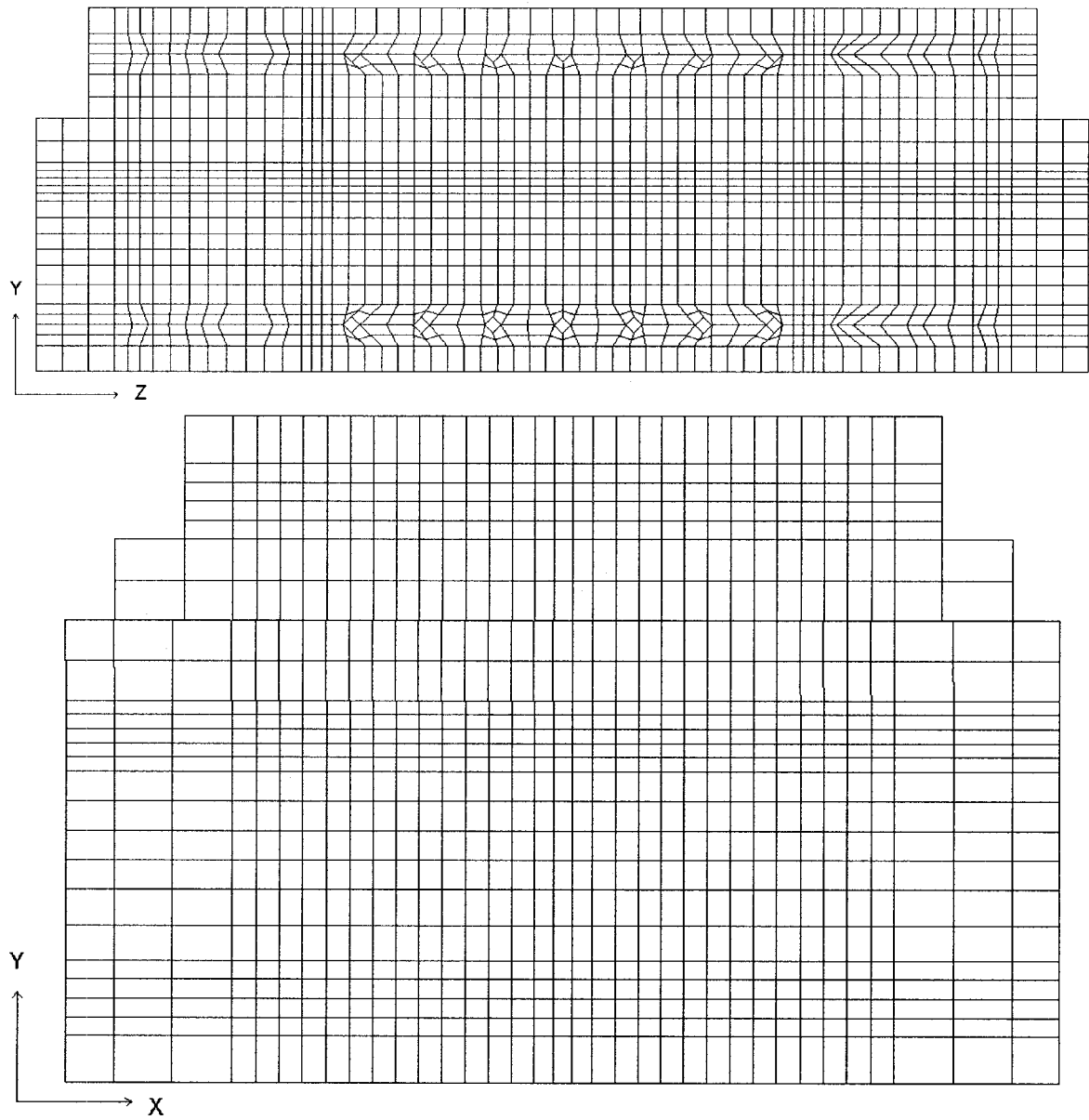
Le maillage tridimensionnel a été réalisé avec le logiciel I-DEAS. Il était important d'utiliser un maillage paramétré (éléments parallélépipédiques) plutôt qu'un maillage libre (éléments tétraédriques, à comparer aux éléments bidimensionnels utilisés précédemment). En effet, la taille caractéristique des éléments est relativement grande (jusqu'à 7 mm dans le moule et plus dans l'isolant), si l'on compare avec les simulations bidimensionnelles. On ne peut donc pas négliger l'erreur que l'on obtiendra sur un capteur virtuel placé au milieu d'un élément à cause de l'extrapolation linéaire sur la température lors de la résolution numérique avec LCMFlot. On doit donc placer les capteurs sur des nœuds, ce qui implique un maillage paramétré. Pratiquement, il est aussi plus facile de modifier un maillage paramétré, ainsi que de faire coïncider les éléments d'un volume à l'autre de la géométrie. Chaque partie du moule doit ainsi être divisée en volumes parallélépipédiques. L'interface entre deux de ces volumes doit toujours être une surface unique. Lors du maillage on peut ainsi répercuter le paramétrage (on précise le nombre d'éléments par arête d'un volume) d'un volume à l'autre et assurer la continuité du maillage. Ici, les capteurs de pression placés dans le moule provoquent une subdivision en volumes très importante qui se répercute dans toutes les parties de la géométrie. Au final, 385 volumes peuvent être maillés individuellement (mais le logiciel reconnaît certaines liaisons entre volumes et répercute lui-même les paramétrages).

Ce maillage est composé de 59116 éléments. Une grande partie des éléments est concentrée dans la pièce composite pour plus de précision. Les éléments constituant l'isolant sont les plus grossiers (1 cm de côté pour les plus gros). Le maillage est aussi un peu plus fin autour des éléments chauffants que dans le reste du moule.





Maillage 16-a : maillage de la pièce composite sous les trois angles principaux (la moitié seulement de la vue YZ est représentée).



Maillage 16-b : Vue globale du maillage, du côté et de face.

## ANNEXE II

### COEFFICIENTS DE CONVECTION

Les calculs présentés font référence à des formules et données issues du cours de transfert de chaleur de H. Nguyen. Ils permettent d'obtenir les coefficients d'échange par convection utilisés dans les simulations des chapitres 3 et 4.

#### A) Extérieur du moule

Il s'agit d'un problème de convection externe naturelle sur des plaques horizontales et verticales. Le moule est chauffé à une température de 450K. Le fluide considéré est l'air à 300K. Ses propriétés thermo-physiques sont sous la pression atmosphérique :

$$\rho = 1.17 \text{ kg.m}^{-3}$$

$$\mu = 1.85.10^{-5} \text{ kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$$

$$\nu = 1.57.10^{-5} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$$

$$C_p = 1006 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$$

$$\lambda = 0.03 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$$

$$\alpha = 2.21.10^{-5} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$$

$$\text{Pr} = 0.708$$

On calcule le nombre de Grashof dans ces conditions, avec  $T_p$  la température de la paroi et  $T_\infty$  la température de la pièce:

$$Gr = \beta \cdot g \cdot L^3 \cdot \frac{|T_p - T_\infty|}{\nu^2} \quad \text{où } \beta = \frac{1}{T_\infty} \text{ pour un gaz parfait}$$

On a donc :

$$Gr = \frac{9.8}{300} \times \frac{|450 - 300|}{(3.2 \cdot 10^{-5})^2} L^3 = 4.5 \cdot 10^9 L^3$$

### Calcul du coefficient d'échange sur le côté du moule :

Il s'agit d'une plaque verticale de 10 cm de hauteur, d'où :

$$Gr = 4.5 \cdot 10^6$$

Le régime est laminaire. On utilise les relations phénoménologiques donnant le nombre de Nusselt en fonction du nombre de Rayleigh  $Ra = Gr.Pr$  (voir Tableau II-1).

$$Ra = Gr.Pr = 3.2 \cdot 10^6 \quad \text{et} \quad \overline{Nu_L} = 0.53.Ra^{1/4} = 22.4$$

Enfin, la relation suivante donne le coefficient de convection h :

$$h = \frac{\lambda \cdot \overline{Nu_L}}{H} \approx 9 W.m^{-2} K^{-1}$$

### Calcul du coefficient d'échange sur la plaque supérieure

En prenant comme longueur caractéristique  $L=10$  cm, on obtient :

$$Ra = 3.2 \cdot 10^6 \quad \text{et} \quad \overline{Nu_L} = 0.54.Ra^{1/4} = 22.8$$

D'où : 
$$\underline{h \approx 9.1 W.m^{-2} K^{-1}}$$

En prenant comme longueur caractéristique  $L=30$  cm, on obtient :

$$Gr = 9.5.10^7 \quad Ra = 6.7.10^7 \quad \text{et} \quad \overline{Nu_L} = 0.15.Ra^{1/3} = 57.4$$

D'où : 
$$\underline{h \approx 7.6 W.m^{-2} K^{-1}}$$

### **Calcul du coefficient d'échange sur la plaque supérieure**

En prenant comme longueur caractéristique  $L=10$  cm, on obtient :

$$\overline{Nu_L} = 0.27.Ra^{1/4} = 11.4 \quad \text{d'où} \quad \underline{h \approx 4.5 W.m^{-2} K^{-1}}$$

En prenant comme longueur caractéristique  $L=30$  cm, on obtient :

$$\overline{Nu_L} = 0.07.Ra^{1/3} = 28.4 \quad \text{d'où} \quad \underline{h \approx 3.8 W.m^{-2} K^{-1}}$$

Conditions géométriques	Longueur $L^*$ caractéristique	Conditions de validité	Corrélations donnant $Nu_*$ avec $Ra = Pr Gr_*$
Plaque verticale ou cylindre vertical de grand diamètre	Hauteur $H$	$\forall Ra$	$\left\{ 0,825 + \frac{0,387 Ra^{1/4}}{\left[ 1 + \left( \frac{0,492}{Pr} \right)^{9/16} \right]^{4/3}} \right\}^2$
		$Ra < 10^9$	$0,68 + \frac{0,67 Ra^{1/4}}{\left[ 1 + \left( \frac{0,492}{Pr} \right)^{9/16} \right]^{4/3}}$
		$10^4 < Ra < 10^9$	$0,53 Ra^{1/4}$
		$10^9 < Ra < 10^{12}$	$0,104 Ra^{1/3}$
Cylindre horizontal	Diamètre extérieur $D_e$	$10^{-5} < Ra < 10^{12}$	$\left\{ 0,6 + \frac{0,387 Ra^{1/4}}{\left[ 1 + \left( \frac{0,559}{Pr} \right)^{9/16} \right]^{4/3}} \right\}^2$
		$10^2 < Ra < 10^9$	$0,52 Ra^{1/4}$
		$10^9 < Ra < 10^{12}$	$0,1 Ra^{1/3}$
Sphère	Diamètre $D$	$Ra < 10^{11}$ $Pr > 0,6$	$2 + \frac{0,589 Ra^{1/4}}{\left[ 1 + \left( \frac{0,469}{Pr} \right)^{9/16} \right]^{4/3}}$
		$Ra > 10^3$	$0,63 Ra^{1/4}$
Plaque horizontale chauffant vers le haut ou refroidissant vers le bas	Largeur $l$	$10^4 < Ra < 10^7$	$0,54 Ra^{1/4}$
		$10^7 < Ra < 10^{11}$	$0,15 Ra^{1/3}$
Plaque horizontale chauffant vers le bas ou refroidissant vers le haut	Largeur $l$	$10^5 < Ra < 10^{11}$	$0,27 Ra^{1/4}$
		$10^{11} < Ra < 10^{13}$	$0,07 Ra^{1/3}$

Tableau II-1 : relations phénoménologiques entre  $Ra$  et  $Nu$

### B) Canaux de refroidissement

Il s'agit d'un problème de convection forcée interne dans un tube dont le diamètre hydraulique est  $Dh = 6.35\text{ mm}$  et la longueur  $L = 12\text{ cm}$ . Le débit disponible d'air comprimé (mesuré à l'aide d'un débitmètre *Endress + Hauser Promass F*; le détendeur prévu pour le système de refroidissement du moule a été utilisé) est égal à  $2\text{ dm}^3\text{ s}^{-1}$ . L'aire totale des tubes de refroidissement est de  $4.43.10^{-2}\text{ dm}^2$ , ce qui donne une vitesse d'écoulement de l'air dans chaque tube  $u = 4.5\text{ m.s}^{-1}$ .

Le nombre de Reynolds est calculé par la relation suivante :

$$\text{Re} = \frac{u.D_h}{\nu} \approx 1160$$

L'écoulement est donc laminaire. Dans le cas d'un gaz, le nombre de Prandtl est  $\text{Pr} \approx 0.7$ . On va donc utiliser pour obtenir le nombre de Nusselt l'expression phénoménologique courante, avec le terme  $\mu_f / \mu_p$  qui représente le rapport de la viscosité du fluide aux températures respectives du fluide et de la paroi (qui n'est très différent 1 que pour les fluides très visqueux) :

$$\overline{Nu} = A \left( \text{Re} \cdot \text{Pr} \frac{D_h}{L} \right)^n \left( \frac{\mu_f}{\mu_p} \right)^{0.14}$$

Où  $n = 0.4$  et  $A = 1.5$  pour les gaz.

Avec cette formule on trouve :

$$\overline{Nu} \approx 6.6$$

Et finalement, le calcul du coefficient de convection naturelle donne :

$$h = \frac{\lambda \overline{Nu}}{D_h} \approx 31 \, Wm^{-2} K^{-1}$$


---



### ANNEXE III

#### PROPRIÉTÉS THERMIQUES ÉQUIVALENTES DE L'ÉVENT ET DU PORT D'INJECTION

Les dispositifs d'évent et d'injection sont deux cylindres de 8 mm de rayon fabriqués en *laiton jaune* ("yellow brass", cf [www.macmaster.com](http://www.macmaster.com)). Ils ont un rayon intérieur de 3 mm, et sont remplis de résine durant les expériences. Aucune circulation d'air n'est donc à rendre en compte. L'aire totale est de 192 mm<sup>2</sup>. Celle de la résine est de 27 mm<sup>2</sup> et celle du laiton de 165 mm<sup>2</sup>.

Le laiton jaune est formé de 65% de cuivre et 35% de zinc, ce qui lui confère une conductivité thermique de 105 W/mK et une capacité calorifique de 385 J/kgK [41]. Si le port d'injection (ou l'évent) est rempli de résine (conductivité 0.3 W/mK, capacité calorifique 1300 J/mK), et que l'on considère une cellule assez grande pour le contenir, alors ses propriétés deviennent avec la loi des mélanges :

$$\lambda = 0.3 \cdot 27 / 192 + 105 \cdot 165 / 192 = 90 \text{ W/mK}$$

$$C_p = 1300 \cdot 27 / 192 + 385 \cdot 165 / 192 = 539 \text{ J/kgK}$$

Ces propriétés sont plus faibles que celles de l'aluminium (cf Tableau 3.2), mais ce matériau équivalent est beaucoup plus conducteur que les capteurs de pression perturbateurs qui délimitent la zone d'étude. Les perturbations thermiques engendrées par l'évent et le port d'injection au centre du moule seront donc négligées par rapport à celles dues aux capteurs de pression.

## ANNEXE IV

### UTILISATION DU PROGRAMME TRANSCONDUCTV.EXE

#### 1°) Conditions préalables

Ce programme qui sert à identifier la conductivité thermique d'un matériau partir de relevés de température a été écrit en langage Basic par Arnaud Millischer. Il requiert donc l'installation de Visual Basic. Les autres conditions nécessaires à son fonctionnement sont la présence du fichier ficdon.txt dans le répertoire c:\conduct\ ainsi que du fichier MSHFLXGD.OCX dans le répertoire c:\winnt\system32\.. Dans le Panneau de configuration de Windows, Options régionales, onglet Nombres, le symbole décimal doit être le point (.) et non la virgule (,).

#### 2°) Type de fichier à utiliser en entrée du programme

Le fichier expérimental doit être un fichier texte ou \*.dat dans lequel :

- les trois premières lignes sont des commentaires
- la quatrième ligne est obligatoirement le temps  $t=0$  s.
- La première colonne indique le temps en secondes
- Les colonnes suivantes indiquent les températures relevées par les thermocouples au temps correspondant sur la même ligne, dans l'ordre de placement dans l'épaisseur (2<sup>ème</sup> colonne = thermocouple situé à une extrémité, dernière colonne = thermocouple situé à l'autre extrémité, les autres suivent l'ordre du placement entre ces deux thermocouples)
- Les colonnes sont séparées par une virgule
- Le symbole décimal est bien le point

### 3°) Utilisation du programme

#### A) Propriétés du matériau

**Tranconduct.v1**

**Propriétés du matériau**

Masse volumique du composite (kg/m3)

Chaleur spécifique du composite

Chaleur spécifique de la résine (J/Kg/K)

Constantes du polynôme	
Constante	<input type="text" value="1157.6"/>
Degré 1	<input type="text" value="4.7086"/>
Degré 2	<input type="text" value="0"/>
Degré 3	<input type="text" value="0"/>

Chaleur spécifique des fibres (J/Kg/K)

Constantes du polynôme	
Constante	<input type="text" value="800.35"/>
Degré 1	<input type="text" value="0"/>
Degré 2	<input type="text" value="0"/>
Degré 3	<input type="text" value="0"/>

Taux de fibres

Figure IV-1 : Ecran de propriétés du matériau du programme transconductv.exe.

Dans cet écran, on indique les propriétés du matériaux composite : masse volumique et chaleur spécifique massique. La chaleur spécifique peut être indiquée sous la forme d'un polynôme pour la résine et les fibres comme sur la Figure IV-1 ou sous forme de données pour le composite global que le programme interpolera comme sur la Figure IV-2. En cliquant sur « rappel d'un fichier de données existant », on peut retrouver la configuration du programme pour un matériau donné. Un tel fichier sauvegarde aussi les informations des écrans suivants.

**Propriétés du matériau**

Masse volumique du composite (kg/m3)

Chaleur spécifique du composite  Rappel d'un fichier de données existant

Chaleur spécifique du composite (J/Kg/K)

Nombre de points de données (<=21)

Température (*K)	Cp (J/Kg/K)
<input type="text" value="273.15"/>	<input type="text" value="1000.00"/>
<input type="text" value="325.15"/>	<input type="text" value="1168.00"/>
<input type="text" value="342.15"/>	<input type="text" value="1217.00"/>

Figure IV-2 : Ecran de propriétés du matériau du programme transconductv.exe.

## B) Données expérimentales

**Données expérimentales**

Épaisseur (m)

Nombre de thermocouples d'identification (<=20)

Position du thermocouple d'identification n°

Figure IV-3 : Ecran des données expérimentales du programme transconductv.exe.

Dans cet écran on précise l'épaisseur  $m$  qui est la distance entre les thermocouples de conditions limites (les deux plus éloignés). On précise ensuite pour chaque thermocouple (ici, un seul) d'identification la distance qui le sépare du premier thermocouple dans la direction dans laquelle on identifie la conductivité thermique. En cliquant sur « choix du fichier expérimental », on ouvre une boîte de dialogue de type « explorer » qui permet de pointer vers le fichier de données.

### C) Points de détermination de la conductivité

Température (K)	Conductivité initiale (W/m/K)	Température (K)	Conductivité initiale (W/m/K)	Température (K)	Conductivité initiale (W/m/K)
300	0.2	352	0.2	405	0.2
308	0.2	360	0.2	412	0.2
315	0.2	367	0.2	420	0.2
322	0.2	375	0.2	425	0.2
330	0.2	382	0.2	430	0.2
337	0.2	390	0.2		
345	0.2	397	0.2		

Figure IV-4 : Ecran des points de détermination du programme transconductv.exe.

Cet écran permet de choisir les intervalles (délimités par deux températures choisies consécutives) sur lesquelles la conductivité thermique sera recherchée sous une forme linéaire. On donne aussi la conductivité initiale au programme, à partir de laquelle il va commencer les itérations. Les résultats peuvent être différents suivant la valeur initiale donnée.

### D) Paramètres numériques

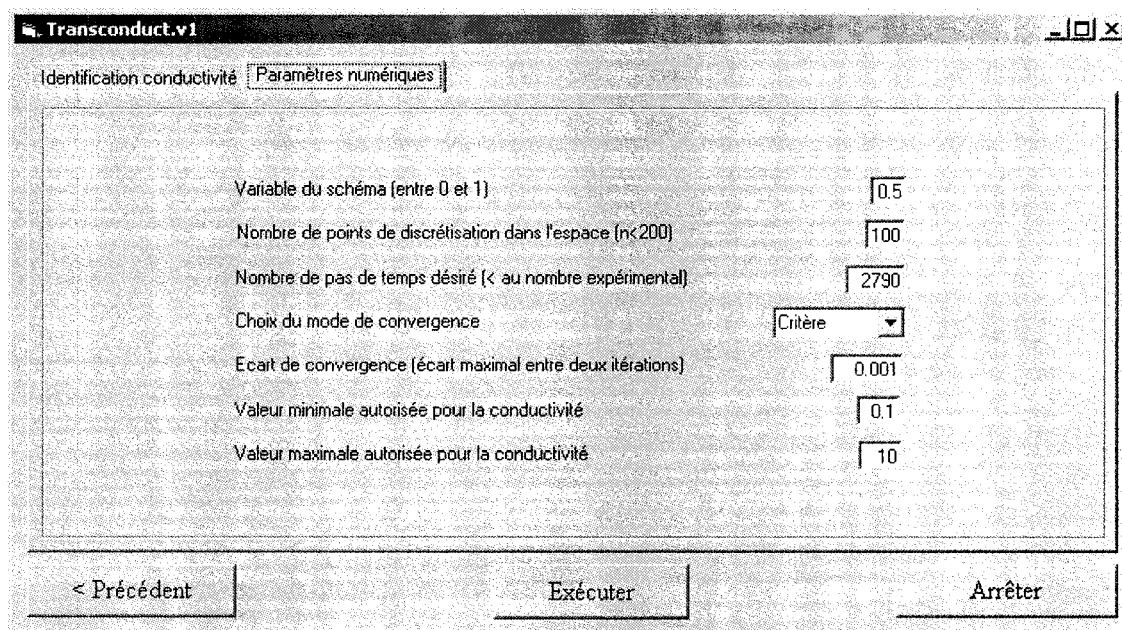


Figure IV-5 : Ecran des paramètres numériques du programme transconductv.exe.

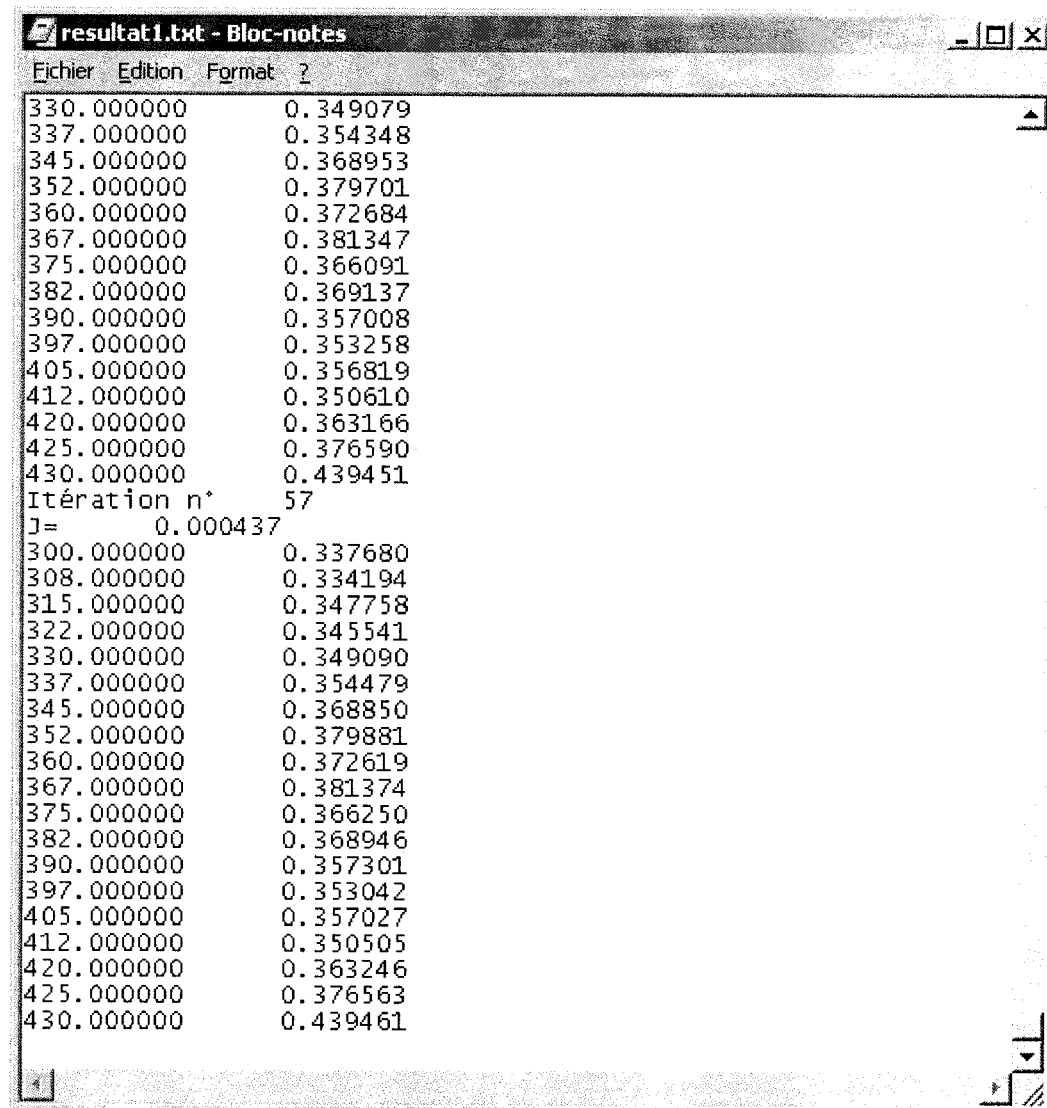
Cet écran permet de régler certains paramètres numériques :

- La variable du schéma symbolise le degré de changement que le programme recherche. Dans le cadre de la mesure de conductivité transverse, une valeur de 0.5 est satisfaisante.
- La deuxième valeur est le nombre de points de discrétisation de l'espace entre les deux thermocouples de conditions limites.
- La troisième valeur est le nombre de pas de temps désiré. On peut ainsi limiter la plage d'étude (mais toujours en partant de  $t=0$ ) sur un fichier donné.
- On peut choisir entre le critère et la température comme critère de convergence.

- Dans les deux cas, le programme s'arrêtera quand la différence entre les critères des deux dernières itérations est inférieur à l'écart de convergence indiqué dans la 5<sup>ème</sup> case.
- Enfin, on choisit les valeurs limites autorisées pour la conductivité thermique à identifier.

### **E) Résultats**

Juste après avoir cliqué sur « exécuter », le programme propose de sauvegarder le fichier de données. Il s'agit du fichier vu en A) que l'on peut ensuite rappeler. Il est possible de suivre l'évolution du critère de convergence pendant l'exécution du programme. Dans le fichier résultat, on trouve pour chaque itération la différence de critère entre cette itération et la précédente. Le fichier résultat se présente sous la forme d'un fichier texte avec les conductivités calculées aux températures demandées :



330.000000	0.349079
337.000000	0.354348
345.000000	0.368953
352.000000	0.379701
360.000000	0.372684
367.000000	0.381347
375.000000	0.366091
382.000000	0.369137
390.000000	0.357008
397.000000	0.353258
405.000000	0.356819
412.000000	0.350610
420.000000	0.363166
425.000000	0.376590
430.000000	0.439451
Itération n° 57	
J= 0.000437	
300.000000	0.337680
308.000000	0.334194
315.000000	0.347758
322.000000	0.345541
330.000000	0.349090
337.000000	0.354479
345.000000	0.368850
352.000000	0.379881
360.000000	0.372619
367.000000	0.381374
375.000000	0.366250
382.000000	0.368946
390.000000	0.357301
397.000000	0.353042
405.000000	0.357027
412.000000	0.350505
420.000000	0.363246
425.000000	0.376563
430.000000	0.439461

Figure IV-6 : Fichier de résultats.